

TRANSIENTE ÄNDERUNG
DER ELEKTRONISCHEN STRUKTUR
VON $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

Von der Fakultät für Physik
der Universität Duisburg-Essen genehmigte

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

von

SIMON FREUTEL

aus Mülheim an der Ruhr

Die vorliegende Arbeit wurde zwischen Januar 2011 und April 2015 in der Gruppe von Uwe Bovensiepen an der Universität Duisburg-Essen angefertigt.

Mülheim an der Ruhr, April 2015

Erstgutachter: Prof. Dr. Uwe Bovensiepen

Zweitgutachter: PD Dr. Kai Rossnagel

Prüfer: PD Dr. Frank-Joachim Meyer zu Heringdorf

Vorsitzender der Prüfungskommission: Prof. Dr. Ralf Schützhold

Tag der mündlichen Prüfung: 13. Juli 2015

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig ohne unzulässige Hilfe Dritter und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche explizit kenntlich gemacht. Die vorliegende Arbeit wurde weder im Aus- noch im Inland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Mülheim an der Ruhr, April 2015

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht die dynamische Antwort des elektronischen Systems des Hochtemperatursupraleiters $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) auf die optische Anregung durch ultrakurze Laserpulse. Mittels der zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie an optimal- und unterdotiertem Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase werden anhand von Änderungen in der elektronischen Struktur zwei Effekte diskutiert, welche aufgrund ihres unterschiedlichen Zeitverhaltens als unabhängig betrachtet werden können. Zum einen ist dies eine photoinduzierte Änderung der effektiven Masse m^* im Bereich der „Kink“-Energie von $E - E_F = -70$ meV, welche innerhalb der Zeitauflösung des Experimentes von ~ 100 fs auftritt und somit als eine direkt durch den Anregepuls verursachte Störung der zu dem „Kink“ führenden elektronischen Wechselwirkung interpretiert werden kann. Zum anderen wird eine Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F beobachtet, was als effektive Änderung der Dotierung interpretiert werden kann und somit neue Möglichkeiten in Bezug auf ultraschnelle optoelektronische Bauteile basierend auf photoinduzierten Phasenübergängen eröffnet.

Darüber hinaus wird die energie- und fluenzabhängige Dynamik angeregter Elektronen untersucht, welche ein biexponentielles Verhalten aufweisen. Während die langsame Komponente dieses Zerfalls von der Anregefluenz unabhängig ist, zeigt die schnelle Komponente einen deutlichen Sprung in der zugehörigen Zerfallszeit ober- und unterhalb der für das Material charakteristischen Energie von 70 meV. Dieser Sprung ist für niedrige Fluenzen am deutlichsten ausgeprägt, was anhand einer theoretischen Modellrechnung diskutiert wird.

Ein großer Teil der vorliegenden Arbeit bestand zudem in der Konstruktion und dem Aufbau eines von Grund auf neuen Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie, dessen Hauptbestandteil in dem Design eines 6-Achsen Manipulators lag, mit dessen Hilfe eine Probe bei tiefen Temperaturen unter Vakuumbedingungen unabhängig in jeweils alle 3 Rotations- und Translationsrichtungen bewegt werden kann. Im Zuge dieser Arbeiten wurden mit dem Aufbau zudem erste Test- und Charakterisierungsmessungen durchgeführt.

Abstract

This work investigates the dynamic response of the electronic system of the high critical temperature superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) due to the optical excitation by ultra short laser pulses. By using time- and angle-resolved photoemission spectroscopy on optimally and underdoped Bi2212 in the pseudogap phase two effects revealed by changes in the electronic structure are being discussed which, due to their different temporal behaviors, can be considered as independent. First, this is an photoinduced change of the effective mass m^* around the kink energy of $E - E_F = -70$ meV, that occurs during the experiment's time resolution of ~ 100 fs and therefore can be interpreted as perturbation of the underlying electronic interaction caused directly by the pump pulse. Second, a shift of the Fermi surface vector k_F is observed, that can be interpreted as an effective change of hole doping that gives rise to new opportunities for possible ultrafast optoelectronic devices based on optically induced phase transitions.

Furthermore, the energy- and fluence-dependent dynamics of excited electrons are investigated, which exhibit a biexponential behavior. While the slow component of this decay seems to be independent from the excitation fluence, the fast component shows a pronounced jump in the corresponding decay time above and below the material's characteristic energy of 70 meV. This jump is most pronounced for the low fluences, which will be discussed in the context of an appropriate theoretical model system.

Moreover, a major part of this work was the construction and build up of an entirely new experimental setup for photoemission spectroscopy. The main part regarding this issue consists of the design of 6-axis manipulator which is capable of moving the sample at low temperature independently in all 3 rotational and translational degrees of freedom. In the context of this work first tests and characterization measurements has been performed using this new setup.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	V
Abstract	VII
Inhaltsverzeichnis	IX
1 Einleitung	1
1.1 Einordnung und Zielsetzung.....	1
1.2 Gliederung	3
2 Supraleitung	5
2.1 BCS-Theorie der Supraleitung	6
2.2 Unkonventionelle Supraleitung	10
2.2.1 Die Kristallstruktur der Kuprate.....	12
2.2.2 Das Phasendiagramm der Kuprate	13
2.2.3 Elektronische Struktur von $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212)	15
3 Experimentelle Grundlagen.....	25
3.1 Photoemissionsspektroskopie.....	25
3.1.1 Das Dreistufen-Modell der Photoemission	28
3.1.2 Das Einstufen-Modell der Photoemission.....	28

3.1.3	Winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (ARPES)	29
3.2	Zeit- und winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (trARPES)	31
4	Experimentelle Aufbauten	35
4.1	Das Laser System	35
4.2	Photoelektronenspektrometer und Vakuumkammer	42
4.2.1	Das konventionelle Flugzeitspektrometer TOF	46
4.2.2	Das positionssensitive Flugzeitspektrometer pTOF	48
4.3	Aufbau eines neuen Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie	50
4.3.1	Ultrahochvakuumkammer	51
4.3.2	6-Achsen Manipulations- und Kühlsystem	53
4.3.3	Das Probenmagazin und Transfersystem	60
4.3.4	Der hemisphärische Analysator	62
4.3.5	Erste Inbetriebnahme	67
5	trARPES an Bi2212	79
5.1	Probenpräparation	79
5.2	Pumpinduzierte Änderung der elektronischen Struktur von optimal dotiertem Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase	84
5.2.1	Änderung der effektiven Masse m^*	87
5.2.2	Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F	91
5.3	Photodotierung	96
5.3.1	Das YRZ-Modell	96
5.3.2	Impuls- und dotierungsabhängige Verschiebung von k_F	101
5.3.3	Vergleich mit dem YRZ-Modell	106
5.4	Dynamik heißer Elektronen	109
5.4.1	Charakterisierung der optischen Anregung	110
5.4.2	Energie- und fluenzabhängige Elektronendynamik	114
5.4.3	Qualitative Erklärung durch den Bosonen-Fenster Effekt	116

6	Zusammenfassung	121
A	Technische Zeichnungen	125
	Literaturverzeichnis	143
	Veröffentlichungen	153
	Danksagung	155

1 Einleitung

1.1 Einordnung und Zielsetzung

Fast 30 Jahre nach der Entdeckung der Hochtemperatursupraleitung in den Kupraten durch Bednorz und Müller [1] stellt dieses Phänomen nach wie vor eines der größten Mysterien im Bereich der Festkörperphysik dar. Nicht zuletzt aufgrund der Vielzahl von potentiell bedeutungsvollen technischen Anwendungen [2-4] motiviert dieses Phänomen bis zum heutigen Tage eine enorme Zahl wissenschaftlicher Bemühungen, welche neben den vielen tausend Veröffentlichungen auf diesem Gebiet zu der ständigen Weiterentwicklung versierter experimenteller Methoden sowie theoretischer Modelle geführt haben [5-8]. Dennoch existiert bis zum heutigen Tag noch immer keine vollständige mikroskopische Theorie, welche die unkonventionelle Supraleitung in umfassender Weise beschreibt. Während die BCS-Theorie [9, 10] die konventionelle Supraleitung mit Hilfe eines Grundzustandes beschreibt, in dem sich zwei Elektronen durch Wechselwirkung mit einem Phonon zu sogenannten Cooper-Paaren verbinden können, ist die Frage nach einer für den Fall der Hochtemperatursupraleitung äquivalenten Wechselwirkung noch immer ungeklärt.

Die Problematik wird zudem durch die Tatsache verkompliziert, dass die Hochtemperatursupraleiter, neben den hohen kritischen Temperaturen, eine beispiellose Vielzahl von ungewöhnlichen Eigenschaften aufweisen, welche sich mit Hilfe der etablierten Theorien der konventionellen Supraleitung ebenfalls nicht erklären lassen [6, 7, 11, 12]. Das Verhalten der Kuprate wird zudem stark von der in den quasi 2-dimensionalen CuO_2 -Kristallebenen enthaltenen Elektronen- bzw. Lochdichte beeinflusst, weswegen diese Materialien anhand eines komplexen temperatur- und dotierungsabhängigen

Phasendiagramms charakterisiert werden. Das Auftreten von Phasen mit, neben der Supraleitung, sogar isolierenden Eigenschaften unterstreicht in diesem Zusammenhang die Komplexität dieser Materialien. Innerhalb dieses Phasendiagramms, existiert ein spezieller nicht-supraleitender Bereich, die sogenannte „Pseudogap“-Phase, von der angenommen wird, dass sie wertvolle Informationen in Bezug auf den Ursprung der Hochtemperatursupraleitung enthält [13, 14]. Derweilen existieren im Wesentlichen zwei Sichtweisen, welche die „Pseudogap“-Phase entweder als zur Supraleitung in Konkurrenz stehend [13, 15] oder als dessen Vorläufer interpretieren [16]. In beiden Fällen ist das Verständnis des Phasendiagramms sowie der damit zusammenhängende Einfluss der Dotierung auf die elektronische Struktur von essentieller Wichtigkeit in Bezug auf ein umfassendes Verständnis des Phänomens der Hochtemperatursupraleitung.

Die winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (ARPES) stellte sich in diesem Zusammenhang als mächtige experimentelle Methode heraus mit dessen Hilfe die elektronische Struktur der Kuprate im Gleichgewicht direkt untersucht werden kann. Die Tatsache, dass eine Vielzahl von möglichen Wechselwirkungen, welche für die charakteristischen Merkmale in den Kupraten (wie z.B. das Auftreten des „Kink“ bei einer Energie von $E - E_F = -70$ meV [17, 18]) verantwortlich sein könnten, in einen ähnlichen Energiebereich fallen, erschwert hier jedoch die Zugänglichkeit durch ARPES. Erst das Hinzufügen einer Femtosekunden Zeitauflösung ermöglicht es prinzipiell die unterschiedlichen Wechselwirkungen anhand ihrer charakteristischen Zeitskalen zu untersuchen. Durch Anregung mittels ultrakurzer Laserpulse wird das System aus seinem Gleichgewichtszustand gebracht, wodurch anhand der anschließenden Ankopplung der angeregten Ladungsträger an weitere Freiheitsgrade wertvolle Einsichten in die zugrundeliegenden Korrelations- und Wechselwirkungsmechanismen gewonnen werden können. Innerhalb der letzten 20 Jahre wurde die zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie (trARPES) somit immer häufiger angewendet um die dynamische Antwort eines Systems direkt in der Zeitdomäne zu untersuchen, was über die Möglichkeiten der statischen Photoemissionsspektroskopie hinaus geht [19-29].

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es einen Beitrag in Bezug auf ein besseres Verständnis des Nichtgleichgewichtszustands des Hochtemperatursupraleiters $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) in der „Pseudogap“-Phase zu leisten. Mit Hilfe der zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie werden die durch optische Anregung

hervorgerufenen transienten Änderungen in der elektronischen Struktur untersucht und in diesem Zusammenhang die Frage behandelt, inwieweit der transient erzeugte Nichtgleichgewichtszustand als eine effektive Veränderung der Dotierung, und somit als photoinduzierter Phasenübergang interpretiert werden kann, was nicht zuletzt auch für zukünftige technische Entwicklungen von großem Interesse wäre. Ein weiterer Gegenstand dieser Arbeit ist zudem die Untersuchung der energie- und fluenzabhängigen Relaxationsdynamik angeregter Elektronen in der „Pseudogap“-Phase.

Aufgrund der ausgeprägten Anisotropie der elektronischen Struktur der Kuprate sind Untersuchungen in unterschiedlichen Bereichen der Brillouin-Zone von großem Interesse. Die Durchführung eines Photoemissionsexperimentes bei verschiedenen Quasiteilchenimpulsen setzt jedoch eine präzise Orientierung der Probe voraus, was durch den dazu nötigen hohen experimentellen Aufwand erheblich erschwert. Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Arbeit bestand daher in der Konstruktion und dem Aufbau sowie der teilweisen Charakterisierung eines neuen Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie dessen Herzstück ein 6-Achsen Manipulator darstellt mit dessen Hilfe eine Probe unter Ultrahochvakuum-Bedingungen bei tiefen Temperaturen in jeweils drei untereinander unabhängige Rotations- und Translationsrichtungen zu bewegt werden kann.

1.2 Gliederung

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt. Kapitel 2 gibt einen Überblick über den derzeitigen Wissensstand bezüglich der Kuprate und des hier untersuchten Materials Bi₂212. Es werden zudem die Grundlagen der konventionellen Supraleitung behandelt, sowie die zur Interpretation der gewonnenen Messdaten verwendete Modelle.

Kapitel 3 beschreibt die verwendete Experimentiertechnik der zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie sowie die damit verbundenen Grundlagen.

Kapitel 4 behandelt die experimentellen Aufbauten welche im Rahmen dieser Arbeit verwendet worden sind. Es beinhaltet eine Beschreibung des Lasersystems sowie der vorhandenen Anlage, welche zur Messung der in Kapitel 5 dargestellten Daten verwendet worden ist. Weiterhin wird der erwähnte Aufbau eines neuen Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie beschrieben. Hierzu werden sämtliche Komponenten sowie die Funktionsweise des 6-Achsen Manipulators detailliert behandelt. Weiterhin werden erste

Testmessungen an einer amorphen Silberprobe vorgestellt, welche für eine erste Charakterisierung des Aufbaus verwendet wurde.

Kapitel 5 diskutiert ausführlich alle im Zuge dieser Arbeit (in einer Kooperation mit den *Brookhaven National Laboratory, Upton, NY 11973, USA*) gewonnen Resultate zeitaufgelöster Messungen an Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase, welche anschließend in Kapitel 6 zusammengefasst werden.

2 Supraleitung

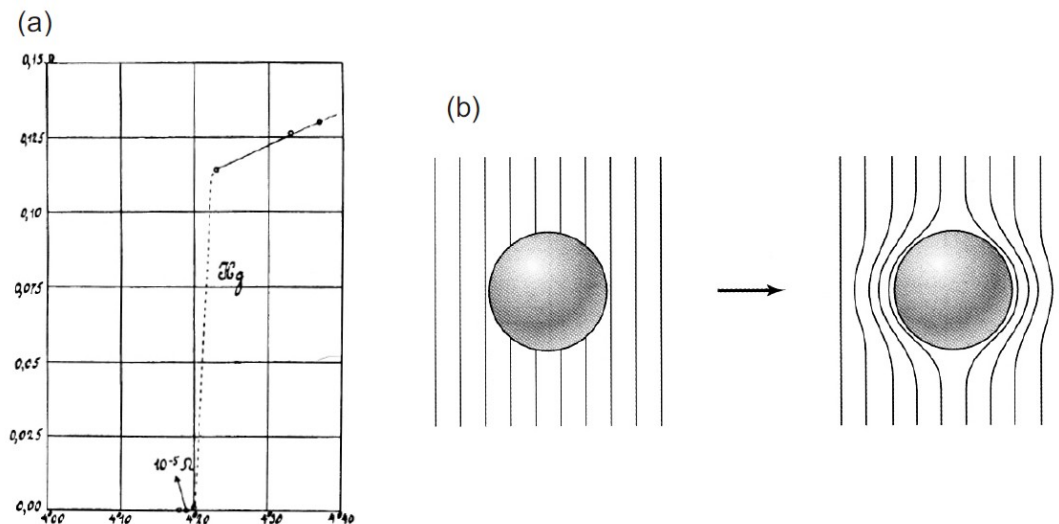


Abbildung 2-1 Eigenschaften eines Supraleiters. a) Originale Messkurve von Heike Kamerlingh Onnes, welche den plötzlichen Verlust des elektrischen Widerstandes von Quecksilber bei einer Sprungtemperatur von $T_c = 4,2$ K zeigt [30]. b) Vollständige Verdrängung des Magnetfeldes aufgrund des Meißner-Ochsenfeld Effektes [31].

Im Jahre 1911 fand der niederländische Physiker Heike Kamerlingh Onnes, dass der elektrische Widerstand in Quecksilber bei einer Temperatur von 4,2 K sprunghaft verschwindet [30] und entdeckte somit die konventionelle Supraleitung. Bis zum heutigen Tage, ca. 100 Jahre später, konnte dieses makroskopische Quantenphänomen in einer Vielzahl von Elementen und Legierungen nachgewiesen werden und ist seit jeher Gegenstand der Forschung. Neben dem schlagartigen Verschwinden des elektrischen Widerstandes bei sehr

niedrigen Temperaturen und die damit einhergehende Möglichkeit zur verlustfreien Übertragung von elektrischem Strom erweisen sich Supraleiter zudem als perfekte Diamagneten ($\mu_r = 0$). Dieser Effekt, welcher die vollständige Verdrängung eines Magnetfeldes aus dem Inneren eines supraleitenden Materials zur Folge hat (Abbildung 2-1 b)), wird Meißner-Ochsenfeld Effekt genannt. Aufgrund dieser für Wissenschaft und Technik nützlichen Eigenschaften erstrecken sich die möglichen Anwendungen für supraleitende Materialien über eine Vielzahl von Bereichen wie z.B. Medizin, Fusionsforschung, Beförderungstechnik und Nuklearwissenschaften um nur einige zu nennen. Der Bedarf nach Materialien mit einer möglichst hohen Sprungtemperatur, nicht zuletzt um diese für kommerzielle Anwendungen finanziell attraktiver zu machen, führte dazu, dass im Laufe der Jahre stetig neue Materialien mit immer größeren Sprungtemperaturen entdeckt wurden (Abbildung 2-2), wobei diese innerhalb der ersten 75 Jahre nach Entdeckung der Supraleitung lediglich auf ~ 25 K erhöht werden konnte. Mit der Entdeckung der unkonventionellen Supraleitung in den sog. Kupraten (2.2) durch Bednorz und Müller [1] im Jahr 1986 gelang es dann die Sprungtemperatur innerhalb weniger Jahre auf weit über 100 K zu erhöhen. Der Rekord für die Sprungtemperatur eines Materials unter Normaldruck liegt derzeit bei 138 K in dem Kuprat $\text{Hg}_{12}\text{Tl}_3\text{Ba}_{30}\text{Ca}_{30}\text{Cu}_{45}\text{O}_{127}$ [32]. Während die konventionelle Supraleitung mittlerweile gut verstanden ist, sind die Kuprate, und folglich auch das in vorliegender Arbeit behandelte $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212), 20 Jahre nach ihrer Entdeckung immer noch Gegenstand intensiver Forschung. Folgendes Kapitel gibt daher einen Überblick über diese Materialklasse und behandelt die Grundlagen sowie die offenen Fragen der konventionellen und unkonventionellen Supraleitung.

2.1 BCS-Theorie der Supraleitung

Nach der Entdeckung der Supraleitung dauerte es nahezu 50 Jahre bis ein vollständige Beschreibung anhand der nach Ihren Erfindern Bardeen, Cooper und Schrieffer benannten BCS-Theorie vorlag [9, 10], welche erstmalig ein mikroskopisches Verständnis der Supraleitung in Metallen bei tiefen Temperaturen lieferte. Kernpunkt dieser Theorie ist die Existenz eines supraleitenden Grundzustandes der energetisch unterhalb des durch die Fermi-Flüssigkeitstheorie beschriebenen Zustandes liegt. In diesem Grundzustand existiert zwischen Elektronen eine durch Elektron-Phonon Kopplung vermittelte, attraktive Wechselwirkung,

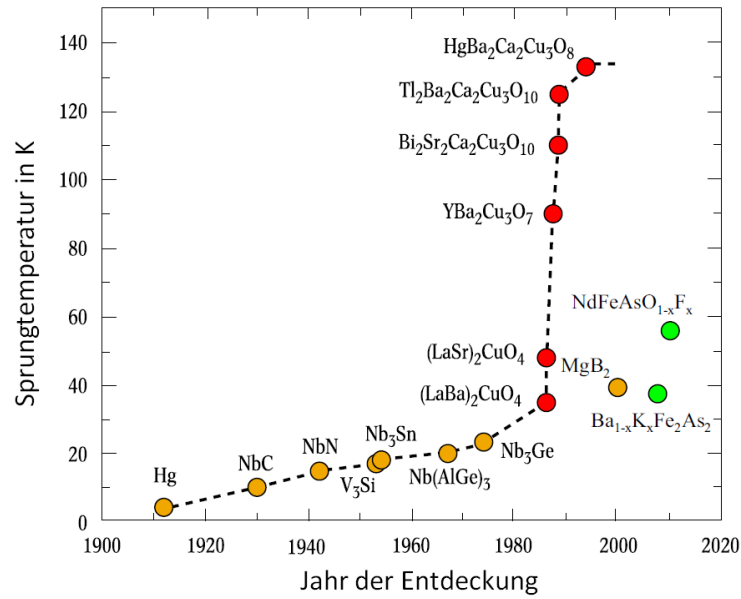


Abbildung 2-2 Zeitliche Entwicklung der höchsten bekannten Sprungtemperaturen. Orange: Konventionelle Supraleiter, rot: Kuprate, grün: 2006 entdeckte Eisen-Pniktide [33]. [34, 35]

wodurch sich zwei Elektronen zu sogenannten Cooper-Paaren verbinden können. In einem vereinfachten Bild verzerrt demnach ein sich durch den Festkörper bewegendes Elektron das Gitter indem es die Atome aus ihrer Ruhelage bringt und so eine Polarisationswolke hinterlässt, welche auf ein weiteres Elektron mit entgegengesetztem Impuls anziehend wirkt (Abbildung 2-3). Ein so gebildetes Cooper-Paar kann einen Spin von $S = 0$ (Singulett) oder $S = 1$ (Triplett) aufweisen, wobei letzteres erst 2010 erstmals experimentell nachgewiesen werden konnte [36]. Cooper-Paare haben folglich bosonischen Charakter und können somit alle denselben Grundzustand besetzen.

Der den BCS-Grundzustand eines Supraleiters beschreibende Hamilton-Operator ist gegeben durch

$$(2.1) \quad \hat{H} = \sum_{\vec{k}, \sigma} \epsilon_{\vec{k}} \hat{c}_{\vec{k}, \sigma}^{\dagger} \hat{c}_{\vec{k}, \sigma} + \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} V_{\vec{k}, \vec{k}'} \hat{c}_{\vec{k} \uparrow}^{\dagger} \hat{c}_{-\vec{k} \downarrow}^{\dagger} \hat{c}_{\vec{k}' \uparrow} \hat{c}_{-\vec{k}' \downarrow}$$

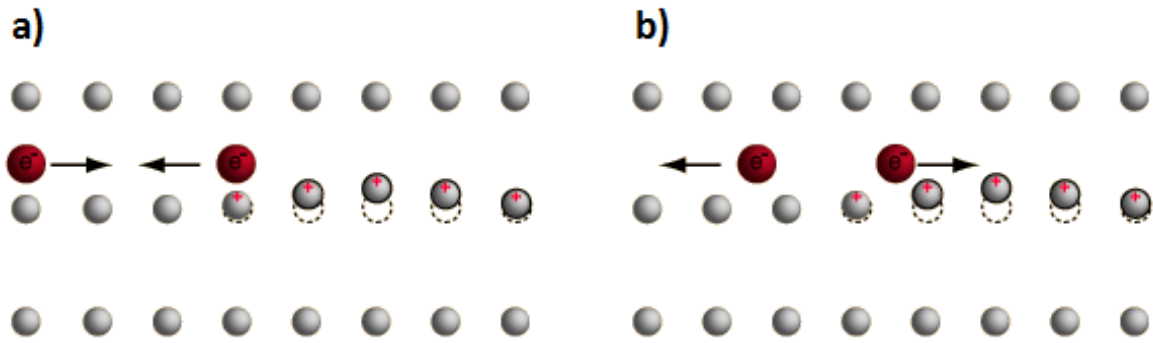


Abbildung 2-3 Darstellung einer attraktiven Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen. a) Ein Elektron polarisiert durch Auslenkung der Gitteratome aus ihrer Ruhelage das Gitter. b) Ein zweites Elektron spürt durch diese Verzerrung eine anziehende Kraft. Die beiden beteiligten Elektronen bilden ein Cooper-Paar welches gegenüber den einzelnen Elektronen energetisch niedriger liegt [37].

mit den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $\hat{c}_{\vec{k},\sigma}$ und $\hat{c}_{\vec{k},\sigma}^\dagger$ von Quasiteilchen mit dem Impuls $\hbar\vec{k}$ und dem Spin σ sowie der Quasiteilchendisersion $\epsilon_{\vec{k}}$ des nicht-supraleitenden Systems [38]. $V(\vec{k},\vec{k}')$ ist die attraktive Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen mit entgegengesetztem Impuls und Spin $\vec{k} \uparrow$ und $-\vec{k} \downarrow$. Im supraleitenden Zustand führt die Bildung der Cooper-Paare zu einer Absenkung der Energie des Gesamtsystems, wodurch das Anregungsspektrum im BCS-Grundzustand bei $T = 0$ K modifiziert wird:

$$(2.2) \quad E_{\vec{k}} = \sqrt{\Delta_{\vec{k}}^2 + \epsilon_{\vec{k}}^2}$$

Hierbei ist Δ der Ordnungsparameter der Supraleitung, welcher die Energieabsenkung der Elektronen durch Cooper-Paar Bildung beschreibt. Im Falle einer impulsunabhängigen, attraktiven Wechselwirkung zwischen den Elektronen hat dies das Auftreten einer isotropen Energielücke von 2Δ im Anregungsspektrum zur Folge (s-Wellenzustand). 2Δ ist folglich die kleinstmögliche Anregungsenergie welche zum Aufbrechen eines Cooper-Paares und zur Erzeugung zweier Quasiteilchen nötig ist.

Geht man von einer konstanten Zustandsdichte im Bereich um die Fermienergie E_F aus, so ergibt sich eine temperaturabhängige Größe des Ordnungsparameters von

$$(2.3) \quad \frac{1}{\lambda} = \int_0^{\omega_D} \tanh\left(\frac{\varepsilon_{\vec{k}}}{2k_B T}\right) \frac{d\varepsilon_{\vec{k}}}{\sqrt{\varepsilon_{\vec{k}}^2 + |\Delta(T)|^2}}$$

mit der dimensionslosen Elektron-Phonon Kopplungskonstante $\lambda \equiv n(E_F)V$ mit dem Volumen V und der Debye Frequenz ω_D . Für Temperaturen nahe der kritischen Temperatur T_c ergibt sich

$$(2.4) \quad \frac{|\Delta(T)|}{|\Delta(0)|} = 1,74 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{1/2}$$

Der temperaturabhängige Ordnungsparameter, sowie die durch das Auftreten der Energielücke erhöhte Zustandsdichte im Bereich deren Ränder ist in Abbildung 2-4 dargestellt.

Weiterhin ergibt sich aus Formel (2.3) für $T = 0$ im Grenzfall der schwachen Kopplung [38] die Größe des Ordnungsparameters zu

$$(2.5) \quad \Delta(T = 0) = 2\hbar\omega_D \exp\left(-\frac{1}{\lambda}\right)$$

sowie die kritische Temperatur T_c zu

$$(2.6) \quad \frac{2\Delta}{k_B T_c} = 1,13\hbar\omega_D \exp\left(-\frac{1}{\lambda}\right)$$

Aus den Gleichungen (2.5) und (2.6) ergibt sich dann

$$(2.7) \quad \frac{2\Delta}{k_B T_c} = 3,52$$

das Verhältnis zwischen Größe der Energielücke und der kritischen Temperatur gemäß der BCS Theorie [38, 39]. Trotz der insgesamt guten Übereinstimmung zwischen den Vorhersagen der BCS Theorie und dem Experiment, zeigen einige konventionelle Supraleiter

(z.B. Blei oder Quecksilber) eine deutliche Abweichung dieses Verhältnisses zu größeren Werten. Darum sei hier der Vollständigkeit halber abschließend erwähnt, dass einige Weiterentwicklungen der BCS Theorie existieren (z.B. Eliashberg Theorie [38]) deren Betrachtung hier jedoch zu weit führen würden.

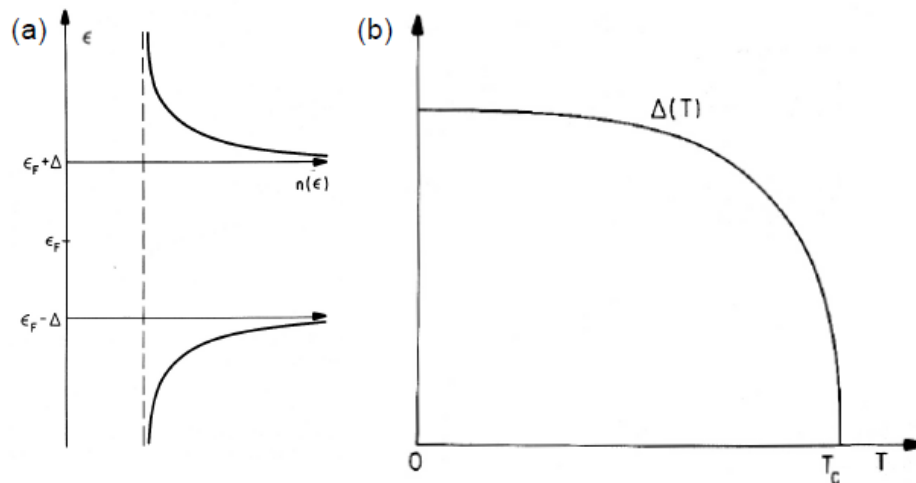


Abbildung 2-4 a) Zustandsdichte um die Fermienergie. Durch das Auftreten einer Energielücke ist die Zustandsdichte an deren Rändern erhöht. b) Temperaturabhängigkeit des Ordnungsparameters Δ des supraleitenden Zustandes. Nach [39]

2.2 Unkonventionelle Supraleitung

1986 entdeckten Georg Bednorz und Alex Müller, dass einige keramische La-Cu-O Verbindungen bei Sprungtemperaturen von bereits > 30 K eine supraleitende Phase aufwiesen [1]. Diese Kupferoxide, die sogenannten Kuprate, zeigen ein, im Sinne der BCS-Theorie, unerwartetes Verhalten und unterscheiden sich anhand einiger Eigenschaften deutlich von den bis dato bekannten, konventionellen Supraleitern. Neben den ungewöhnlich hohen Sprungtemperaturen (heute deutlich über 100 K) handelt es sich bei den Kupraten in ihrer undotierten Form zunächst um nicht metallische Verbindungen, welche erst durch Dotierung zu Supraleitern werden. Weiterhin konnte im Laufe der Zeit gezeigt werden, dass in den Kupraten der Gesamtdrehimpuls eines Cooper-Paares $L = 2$, und somit die Elektronendichte

der Cooper-Paarwellenfunktion d-Wellen artig ist und folglich Nullstellen aufweist [7, 40]. Diese, im Gegensatz zu den BCS-Supraleitern, anisotrope Eigenschaft hat zur Folge, dass die Größe eines Suprastroms, welcher zwischen zwei identischen Kupraten fließt, von deren relativer Orientierung ihrer Kristallstrukturen zueinander abhängt. Somit existieren Richtungen, entlang derer das fließen eines Suprastroms gänzlich unmöglich ist und welche zudem mit dem kompletten Verschwinden der supraleitenden Energielücke einhergehen [41] (2.2.3). Desweiteren besitzen die Kuprate zudem Werte für die kritischen Stromdichten und Magnetfeldstärken, welche ebenfalls weit über denen durch die BCS-Theorie beschriebenen Supraleitern liegen.

Während im Falle der konventionellen Supraleiter die Paarbildung im Wesentlichen durch Elektron-Phonon-Kopplung zustande kommt, ist der relevante Mechanismus für die Hochtemperatursupraleitung noch immer umstritten. Neben der Tatsache, dass die hohen Sprungtemperaturen von deutlich über 100 K nur schwerlich mit den gängigen Theorien zu vereinbaren sind, lässt im Falle der Kuprate zudem ein stark ungewöhnlicher Isotopeneffekt an einer alleinigen Rolle der Elektron-Phonon-Wechselwirkung bei der Cooper-Paarbildung zweifeln [42-48]. Neben der Vorstellung, dass der Paarungsmechanismus zwischen den Elektronen durch eine zusätzliche Wechselwirkung zustande kommt (wie z.B. durch Spinfluktuationen [49-52]), existieren einige Modelle, welche den Paarungsmechanismus als Resultat einer starken Coulomb Wechselwirkung beschreiben welcher somit rein elektronischen Ursprungs wäre [53, 54]. Ein Beispiel hierfür ist die von Anderson vorgeschlagene RVB-Theorie, welche auch als Grundlage für das in Abschnitt 5.3.1 behandelte YRZ-Modell Anwendung findet. Eine quantitative Erklärung der Hochtemperatursupraleitung in den Kupraten konnte allerdings auf Basis dieser Modelle bisher noch nicht erbracht werden.

Es sei hier noch erwähnt, dass neben den Kupraten, welche in vorliegendem Kapitel behandelt werden, noch weitere unkonventionelle Supraleiter existieren, welche hier nicht weiter behandelt werden sollen. Als Beispiel sind jedoch die erst 2006 entdeckten Eisen-Pniktide [33] oder die Schwere-Fermionen-Supraleiter [55] zu nennen.

2.2.1 Die Kristallstruktur der Kuprate

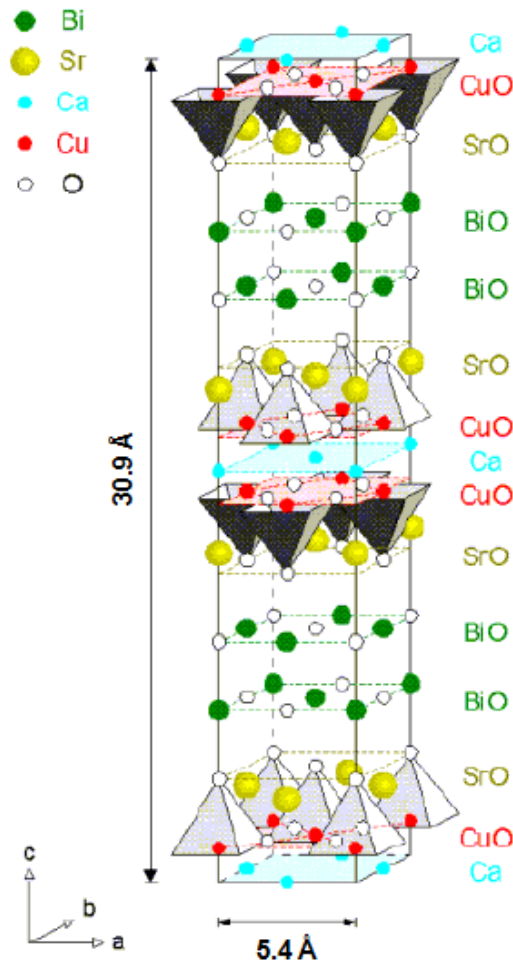


Abbildung 2-5 Einheitszelle von $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ [56].

Die Familie der Kupferoxid-basierten Hochtemperatursupraleiter, die sogenannten Kuprate, zeichnet sich durch eine Kristallstruktur aus, welche auf die des Perowskits (CaTiO_3) zurück geht. Da die einzelnen Ebenen in Richtung der c-Achse (Abbildung 2-5) nur durch relativ schwache van-der-Waals Kräfte miteinander verbunden sind, bilden die Kuprate quasi 2-dimensionale Schichtstrukturen, welche stets aus einer oder mehreren Lagen Kupferoxid bestehen, die durch Zwischenschichten aus anderen Elementen voneinander getrennt sind. Die Einheitszelle des in vorliegender Arbeit behandelten Kuprates $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (Entsprechend der Stöchiometrie auch Bi2212 oder BSCCO genannt) ist in

Abbildung 2-5 dargestellt. Innerhalb der Kupferoxidebenen ist jedes Kupferion quadratisch von vier Sauerstoffatomen umgeben (CuO_2), wobei im Falle des vorliegenden Bi2212 die Richtung der Kupfer-Sauerstoff-Bindungen relativ zu den Gittervektoren a und b um 45° gedreht ist. Auch in senkrechter Richtung (c-Achse) ist jedes Kupferion von einem Sauerstoffion umgeben, so dass jedes Kupferion mit dem umliegenden Sauerstoff eine Pyramide bildet. Zwischen zwei eng benachbarten Kupferoxidebenen (ca. 0,3 nm) befindet sich eine Schicht aus Calcium, wobei jede dieser CuO_2 -Doppelschichten durch zwei Schichten aus Wismutoxid sowie zwei Schichten aus Strontiumoxidebenen voneinander getrennt sind.

Die außerhalb der Kupferoxidebenen auftretenden Verbindungen sind nicht-leitender Natur und leisten somit keinen Beitrag zum Valenzband des Kuprates, welches ausschließlich durch die CuO_2 -Schichten gebildet wird. Diese sind der wesentliche Baustein für die Hochtemperatursupraleitung, wobei die höchsten Übergangstemperaturen für diejenigen Kuprate gefunden wurden, bei denen die CuO_2 -Ebenen möglichst nahe beinander liegen. Jedoch dienen die Zwischenebenen als eine Art Ladungsträger-Reservoir für die Kupferoxidschichten, welche sich somit zu Cooper-Paaren zusammenschließen. Hierfür spielt der Sauerstoffgehalt der Verbindung eine wichtige Rolle, auf welche im folgenden Abschnitt genauer eingegangen wird.

2.2.2 Das Phasendiagramm der Kuprate

In Ihrer undotierten Form sind alle Kuprate Isolatoren (genauer gesagt Mott-Isolatoren, wie in 2.2.3 beschrieben). Erst durch das Hinzufügen von weiteren Ladungsträgern durch Dotierung können die Eigenschaften eines Kuprates stark beeinflusst werden und schließlich eine supraleitende Phase erzeugt werden. Während dies bei einigen Kupraten durch die chemische Substitution mit Elementen anderer Wertigkeit erreicht wird, fügt man dem hier betrachteten Bi2212 weitere Sauerstoffatome hinzu (5.1), so dass sich die Formeleinheit zu $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ ändert. Da jedes Sauerstoffatom 2 Elektronen bindet und somit O^{2-} -Ionen gebildet werden, reduziert sich die Anzahl der Ladungsträger in den Kupferoxidschichten. Man spricht daher von Lochdotierung. Der Zusammenhang zwischen dem zugefügten Anteil an Sauerstoffionen pro Einheitszelle x und der zugehörigen Phase ist in Abbildung 2-6 dargestellt.

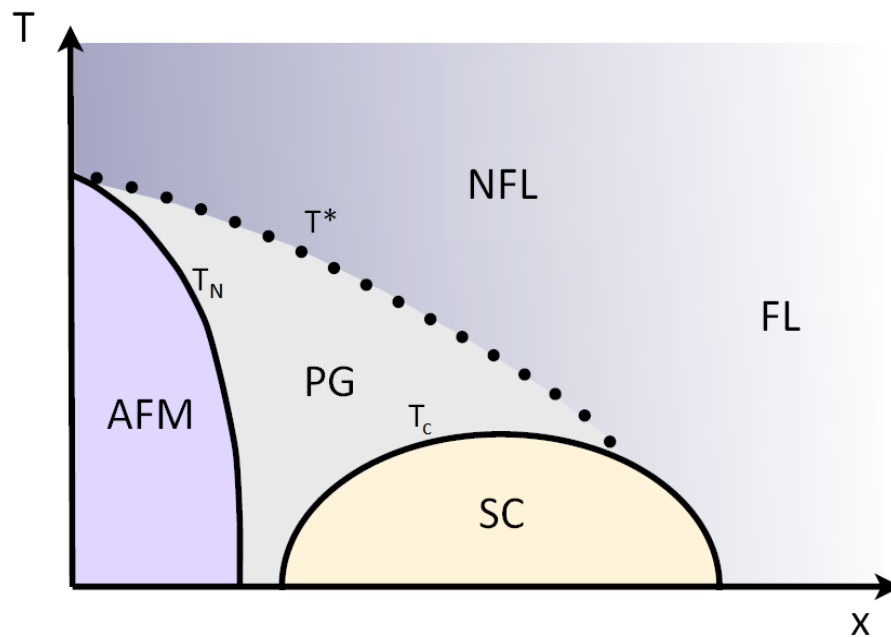


Abbildung 2-6 Universelles Phasendiagramm der Kuprate. SC: Supraleitende Phase, AFM: Antiferromagnetische Phase, PG: „Pseudogap“ Phase, FL: Fermi-Flüssigkeit Phase, NFL: Nicht-Fermi-Flüssigkeit Phase. Nach [56].

Wie bereits erwähnt, sind die Kuprate in Ihrer undotierten Form nicht-leitende Mott-Isolatoren mit einer antiferromagnetischen Spinordnung. Die Néel-Temperatur, welche das Einsetzen dieser Spinordnung markiert, liegt für Bi2212 bei $T_N \approx 300$ K [57] und sinkt bei zunehmender Dotierung stetig bis sie schließlich bei einem Wert von knapp unterhalb $x = 0,05$ komplett verschwindet. Erhöht man die Dotierung weiter, setzt kurz darauf Supraleitung ein, wobei die Übergangstemperatur mit zunehmendem x ansteigt und bei einem Wert von $x \approx 0,16$ ihr Maximum von $T_c \approx 91$ K erreicht. Man spricht in diesem Fall von optimaler Dotierung, während die Bereiche welche im Phasendiagramm links und rechts von diesem Punkt liegen als unter- bzw. überdotierte Bereiche bezeichnet werden. Bei sehr starker Überdotierung ab einem Wert von $x \approx 0,27$ verschwindet die Supraleitung schließlich und das Material wird bei allen Temperaturen zu einem Normalleiter der sich gut durch die Fermi-Flüssigkeitstheorie beschreiben lässt.

Die unterdotierte Seite des Phasendiagramms ist insbesondere bei Temperaturen oberhalb der Sprungtemperatur durch das Auftreten einer Energielücke unterhalb einer Übergangstemperatur T^* gekennzeichnet (die genaue Lage von T^* ist umstritten, da es unklar

ist ob hier eine neue Phase einsetzt oder andere Phänomene eine Rolle spielen), welche zwar der supraleitenden Energielücke in Bezug auf ihre Impulsabhängigkeit ähnelt, jedoch auftritt, ohne dass sich das Material in der supraleitenden Phase befindet [58] (Abschnitt 2.2.3).

Oberhalb der Übergangstemperatur T^* zeigen die Kuprate ebenfalls ein stark unerwartetes Verhalten, was als „strange metal“ oder Nicht-Fermi-Flüssigkeit Phase bezeichnet wird. Zwar besitzen die Kuprate in dieser Phase eine Fermifläche, welche konsistent mit Berechnungen des Bändermodells zu sein scheinen, jedoch weisen sie untypische Eigenschaften auf, wie z.B. einen linear von der Temperatur abhängigen, elektrischen Widerstand [59]. Innerhalb dieser sogenannten „Pseudogap“ Phase, welche auch in vorliegender Arbeit untersucht wird, zeigt das Material eine Vielzahl von ungewöhnlichen Eigenschaften, auf die näher in Abschnitt 2.2.3 eingegangen wird.

Zuletzt sei erwähnt, dass im Gegensatz zu der oben beschriebenen Lochdotierung auch eine Elektrondotierung möglich ist, welche hier aber nicht im Detail behandelt wird. Im elektrodotierten Fall ist die Sprungtemperatur T_c geringer und die supraleitende Phase somit weniger ausgeprägt ist. Zudem existiert diese nur innerhalb eines kleineren Bereiches von x als im lochdotierten Fall. Die antiferromagnetische Spinordnung ist dahingegen stabiler und bleibt in Bezug auf die Dotierung länger erhalten.

2.2.3 Elektronische Struktur von $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212)

Wie bereits in Abschnitt 2.2.1 erwähnt, spielt sich die relevante Physik der Kuprate in den Kupferoxidebenen ab, innerhalb derer die Kupferatome als Cu^{2+} -Ionen vorliegen. Jedes Kupferatom ist von sechs Sauerstoffatomen umgeben, mit welchen es eine Pyramide bildet. Die Tatsache, dass diese Struktur durch eine leichte Verschiebung des Apex-Sauerstoffatoms ein wenig von der einer perfekten Pyramide abweicht, hat eine Aufhebung der Entartung der E_g -Orbitale des Kupfers zur Folge. Die $d_{x^2-y^2}$ -Orbitale des Kupfers besitzen damit die höchste Energie und sind folglich mit je einem Elektron gefüllt. Zwar sollte laut dem Bändermodell dieses zur Hälfte gefüllte Orbital metallische Eigenschaften des Materials zur Folge haben, jedoch findet man stattdessen die Kuprate in Ihrer undotierten Form als Isolatoren mit einer antiferromagnetischen Anordnung der Spins. Eine vereinfachte Erklärung für dieses Verhalten liefert das Ein-Band-Hubbard-Modell. Dieses Modell vernachlässigt zunächst die orbitale Struktur und betrachtet ein Netz aus Gitterplätzen, auf denen jeweils zwei Elektronen

mit entgegengesetztem Spin Platz finden. Dieses ist in zweidimensionaler Form in Abbildung 2-7 dargestellt. Der Hamilton-Operator für dieses Modell lautet:

$$(2.8) \quad \hat{H} = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (\hat{c}_{i,\sigma}^\dagger \hat{c}_{j,\sigma} + \hat{c}_{j,\sigma}^\dagger \hat{c}_{i,\sigma}) + U \sum_{i=1} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$$

Der erste Term beschreibt die Möglichkeit der Elektronen, bei gleichbleibendem Spin, zu einem benachbarten Gitterplatz zu springen und dadurch die Energie t zu gewinnen. Aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung kostet es jedoch die Energie U , wenn sich zwei Elektronen auf demselben Gitterplatz aufhalten, was durch den zweiten Term beschrieben wird. Für ein halb gefülltes Band ergibt sich demnach im Falle für $U \gg t$ der energetisch günstigste Zustand wenn jeder Gitterplatz mit einem Elektron besetzt ist. Die Elektronen sind stark lokalisiert und das Material ist ein Mott-Isolator, welcher durch das Auftreten zweier Bänder charakterisiert ist (Oberes- und Unteres Hubbard-Band), welche durch eine Energielücke voneinander getrennt sind. Weiterhin haben die Elektronen die Möglichkeit durch sogenanntes „virtuelles Springen“ zusätzlich Energie zu gewinnen [60]. Da dies wegen dem Pauli-Prinzip nur für antiparallel ausgerichtete Spins möglich ist, favorisiert das System eine antiferromagnetische Spinordnung.

In Falle der Kupferoxidebenen zeigen die Keulen der $d_{x^2-y^2}$ -Orbitale des Kupfers genau auf die Keulen der benachbarten p-Orbitale und gehen mit diesen eine starke kovalente Bindung ein, was in einem großen Sprungintegral t_{pd} resultiert (Abbildung 2-8). Auch wenn das oben beschriebene Ein-Band-Hubbard-Modell qualitativ gute Ergebnisse liefert, ist die Situation im Falle der Kuprate etwas komplizierter, da hier neben dem d-Orbital des Kupfers noch das p_x und p_y -Orbitale des Sauerstoff an der Bindung beteiligt ist [61, 62]. In diesem, sogenannten Drei-Band Modell ergeben sich durch die p-Orbitale des Sauerstoffs bzw. durch die resultierende Hybridisierung weitere Bänder, wobei die 2p Orbitale des Sauerstoff voll- und das $3d_{x^2-y^2}$ Orbitale des Kupfers einfach besetzt ist. Die sogenannte Ladungsaustausch Energie Δ_{CT} , welche in diesem Fall nötig ist, um ein Elektron von einem p in das d Orbital anzuregen ist klein gegenüber der Coulomb-Abstoßung welche die Elektronen im Falle einer doppelten Besetzung des $3d_{x^2-y^2}$ Orbitale des Kupfers erfahren würden. Diese Eigenschaft ($\Delta_{CT} < U$) charakterisiert die Kuprate etwas genauer als Ladungsaustausch-Isolatoren [63].

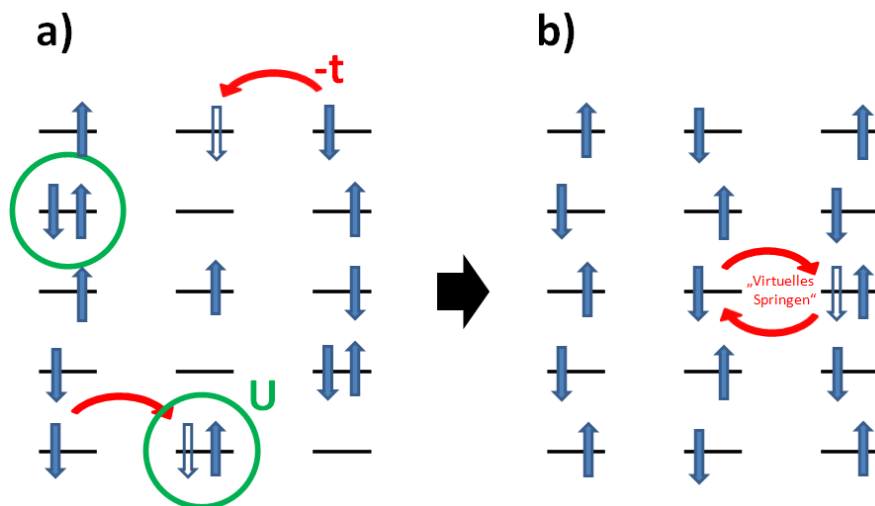


Abbildung 2-7 Zweidimensionale Darstellung des Hubbard-Modells. a) Pro Gitterplatz können sich jeweils zwei Elektronen mit antiparallelem Spin befinden. Die Elektronen können unter Beibehaltung Ihrer Spinrichtung zu einem benachbarten Platz springen und durch die damit verbundene Delokalisierung Ihre Energie verringern ($-t$). Im Gegensatz hierzu erfahren Elektronen, welche sich auf demselben Gitterplatz befinden eine abstoßende Coulomb-Wechselwirkung der Größe U . b) Für $U \gg t$ ist der günstigste Zustand der, bei dem die Elektronen auf einzelnen Gitterplätzen sitzen und somit stark lokalisiert sind. Man spricht von einem Mott-Isolator. Die antiferromagnetische Spinanordnung kommt dadurch zustande, dass die Möglichkeit des „virtuellen Springens“ zu einer weiteren Energieabsenkung führt, weswegen diese Ordnung favorisiert wird.

Durch Lochdotierung werden sukzessive Löcher zwischen die Kupferoxidebenen eingebracht und eine erhöhte Mobilität der Elektronen ist die Folge. Bei geringen Dotierungen sorgt die antiferromagnetische Spinordnung dafür, dass hauptsächlich elektronische Übergänge zu den nächsten Nachbarn ermöglicht werden. Erhöht man die Dotierung weiter setzt Supraleitung ein, wobei die dazu führenden Korrelationsmechanismen unklar sind und das nachwievor größte Problem der Hochtemperatursupraleitung darstellen. Bei starken Dotierungen wird die antiferromagnetische Ordnung aufgebrochen und die Coulomb-Wechselwirkung ist aufgrund der hohen Mobilität der Ladungsträger so stark abgeschirmt, dass sich ein im Sinne der Fermi-Flüssigkeitstheorie metallischer Zustand einstellt.

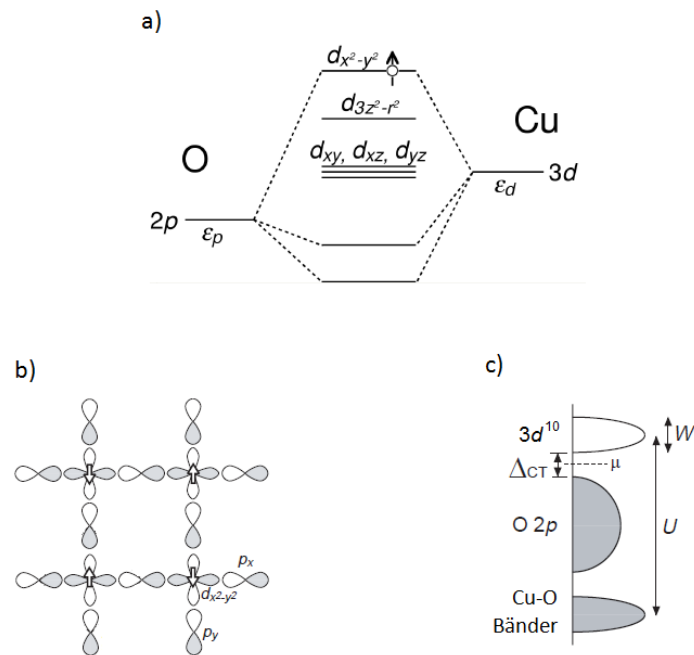


Abbildung 2-8 a) Schematische Darstellung der aus der Bindung resultierenden Energieniveaus der Cu 3d und O 2p Orbitale. b) Lage der Orbitale innerhalb der CuO₂-Schichten. c) Elektronische Struktur der CuO₂-Ebenen. Nach [64]

Aufgrund der starken Korrelationseffekte in den Kuprate, liefern etablierte theoretische Konzepte, wie zum Beispiel die Tight-Binding-Methode oder die Dichte-Funktional-Theorie, welche zur Berechnung der Bandstruktur bzw. der Fermifläche bei Metallen erfolgreich verwendet werden, im Falle von Bi2212 erst für sehr hohe Dotierungen wirklich brauchbare Ergebnisse (Abbildung 2-9). Trotz der Tatsache, dass von den erwähnten Modellen keinerlei Korrelationseffekte oder Elektron-Boson Wechselwirkungen berücksichtigt werden, existieren in diesem Dotierungsbereich jedoch einige Ähnlichkeiten mit den experimentellen Befunden, so dass diese oft zur Orientierung und Illustration verwendet werden. Abbildung 2-9 zeigt demnach die nach der Tight-Binding-Methode berechnete Energiedispersion der ersten Brillouin-Zone [56, 65]. Da die so bestimmte, idealisierte Fermifläche in guter Näherung durch einen um den Punkt (π, π) zentrierten Kreis approximiert werden kann, wird zur Parametrisierung eines Punktes auf dieser Fläche der sogenannte Fermiflächenwinkel ϕ verwendet. ϕ gibt die Größe des Winkels an, welcher von einer der Kanten der ersten Brillouin-Zone und einer Geraden durch den Punkt (π, π) eingeschlossen wird.

Ein großer Unterschied zwischen der realen Fermifläche für Bi2212 und der in Abbildung 2-9 gezeigten besteht in dem Auftreten der Pseudo- und der supraleitenden Energielücke. Beide zeigen ein in Bezug auf die Impulsabhängigkeit der Energielücke ähnliches, d-Wellenartiges Verhalten, welches sich vor allem durch das Verschwinden derselben entlang der nodalen Linie (Verbindung der Punkte $(-\pi, -\pi)$ und (π, π) der ersten Brillouin-Zone.) auszeichnet und in Abbildung 2-10 dargestellt ist. Obwohl Bi2212 in der unterdotierten bis zur schwach überdotierten Phase oberhalb von T_c eine nahezu metallische Leitfähigkeit besitzt [5], verhindert das Auftreten der Pseudo-Energielücke eine geschlossene Fermifläche, wie dies für ein Metall zu erwarten wäre und was zudem eine Verletzung des Luttinger-Theorems mit sich bringt, nach dem der von der Fermifläche eingeschlossene Bereich der Brillouin-Zone mit der Anzahl der freien Ladungsträger des Systems in Verbindung steht. Mit kleiner werdender Dotierung tritt in einem immer größeren Bereich der Brillouin-Zone die Pseudo-Energielücke auf, welche von großen Impulsen kommend einen immer größeren Teil der Fermifläche „verschwinden“ lässt. Die von der Fermifläche übrigbleibenden Bereiche, Fermi-„Arcs“ genannt, sind schematisch für verschiedene Dotierungen in Abbildung 2-11 dargestellt und werden in Abschnitt 5.3.1 anhand des YRZ-Modells im Detail behandelt. Weiterhin vergrößert sich die Pseudo-Energielücke bei kleiner werdenden Dotierungen, was im Gegensatz zu der supraleitenden Energielücke steht, deren Größe sich für diesen Fall verringert.

Die Fragen nach dem Ursprung dieser Pseudo-Energielücke, sowie ihrer Verbindung zur supraleitenden Phase sind nachwievor ungeklärt und werden stark debattiert [13, 58, 66-69]. In ihrer Beantwortung wird die grundlegende Problematik des Paarungsmechanismus der Hochtemperatursupraleitung vermutet, wobei derzeit hauptsächlich zwei Sichtweisen bezüglich der „Pseudogap“-Phase existieren. Zum einen wird das Auftreten der Pseudo-Energielücke als „Vorbote“ der Supraleitung gedeutet, in der sich unterhalb von T^* bereits inkohärente Cooper-Paare bilden, welche jedoch noch nicht in ausreichenden Maße kondensiert sind bzw. keine langreichweitige Ordnung besitzen [70]. Andererseits kann das Auftreten der Pseudo-Energielücke als eine zur Supraleitung in Konkurrenz stehende, neuartige Ordnung betrachtet werden, welche sich für Temperaturen oberhalb T_c und unterhalb T^* gegenüber dieser durchsetzt und verhindert, dass das Material in die supraleitende Phase übergeht [69, 71]. Darüber hinaus existieren zudem Arbeiten, welche das gleichzeitige Eintreten beider Vorstellungen beschreiben [20, 72].

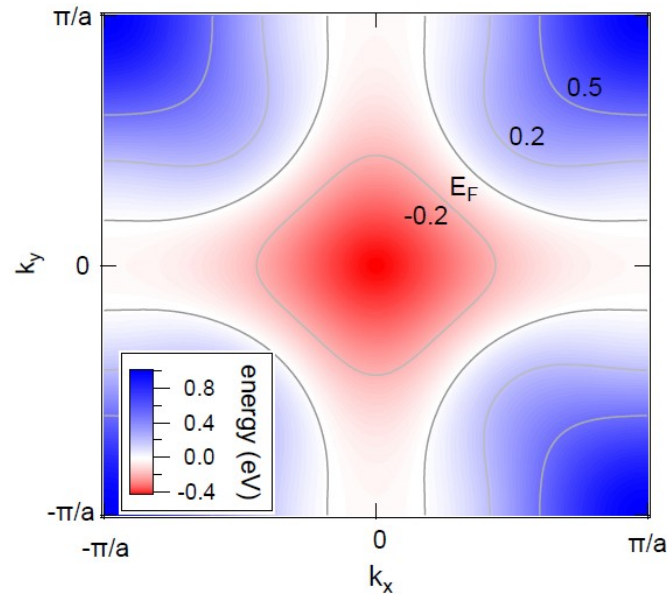


Abbildung 2-9 Energiedispersion der ersten Brillouin-Zone für Bi2212 in einer Falschfarbendarstellung. Nach [65]. Die Parametrisierung erfolgte in diesem Fall anhand gemessener ARPES (0) Daten, an welche Funktionen des Tight-Binding-Modells angepasst wurden.

Neben dem Auftreten der Energielücken zeigt die für Bi2212 beobachtete Dispersion einen deutlichen Unterschied zu dem Verlauf theoretischer Berechnungen. Dieser besteht in Abweichungen zu einem einfachen linearen oder parabolischen Verlauf, welcher in Form von sogenannten „Kinks“ (von. engl. für „Knick“) auftritt. Das prominenteste Beispiel dieses Phänomens in Bi2212 ist der in der nodalen Region auftretende „Kink“ bei einer Bindungsenergie von ~ 70 meV [17, 18], welcher auch in Abschnitt 5.2.1 thematisiert wird und schematisch in Abbildung 2-12 dargestellt ist. Da die Krümmung eines Bandes durch die Größe der effektiven Masse der zugehörigen Quasiteilchen bestimmt wird, bedeutet ein plötzliche Veränderung der Dispersion innerhalb eines endlichen Energie- oder Impulsbereiches folglich, dass die effektive Masse m^* in diesem Bereich modifiziert ist [73]. Ein möglicher Grund für ein derartiges Verhalten ist das Einsetzen einer Wechselwirkung zwischen den Quasiteilchen des Bandes mit einer bosonischen Mode, wie beispielsweise Phononen oder Magnonen, einer wohldefinierten Energie. Hierdurch entstehen neue Relaxationskanäle, welche oberhalb einer Energieschwelle angeregt werden könnten und somit die Lebenszeit der Quasiteilchen verringern und die Dispersion in Bezug auf Ihren reinen, freie-Elektronen-artigen Verlauf ohne Elektron-Boson-Wechselwirkung beeinflussen.

Diese Wechselwirkungen werden durch die elektronische Selbstenergie $\Sigma_k(\omega)$ beschrieben. Der Imaginärteil der Selbstenergie, welcher die Streurate der Quasiteilchen bestimmt, steht zudem in einem kausalen Zusammenhang mit dem Realteil der Selbstenergie (Kramers-Kronig-Beziehungen [74]), welcher wiederum die Dispersion der Quasiteilchen modifiziert. Demnach hat also eine Veränderung der Streurate ebenfalls eine Renormalisierung der Dispersion und somit der effektiven Masse zur Folge. Die effektive Masse erhöhte sich durch die Kopplung an eine bosonische Mode um den Faktor $(1+\lambda)$, wobei der Zusammenhang zwischen dem Realteil der Selbstenergie und dem Massenerhöhungsfaktor λ in der Nähe des Ferminiveaus direkt gegeben ist durch:

$$(2.9) \quad \lambda = - \frac{\partial \text{Re}(\Sigma_k)}{\partial \omega}$$

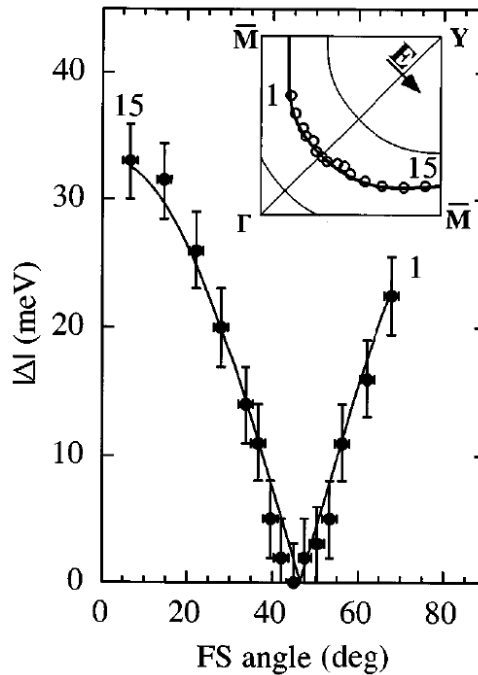


Abbildung 2-10 Energielücke bei verschiedenen Fermiflächenwinkeln.
Nach [41].

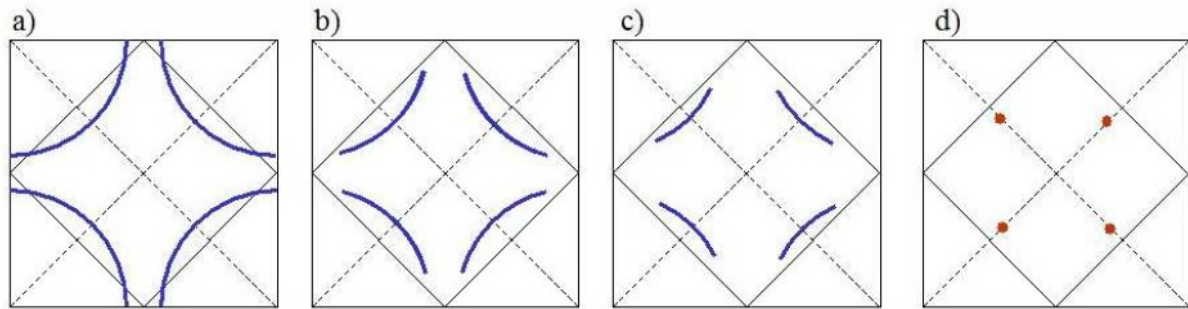


Abbildung 2-11 Schematische Fermifläche von Bi2212 für die a) stark überdotierte und b)-c) zunehmend unterdotierte Phase. d) Die nodalen Punkte in der supraleitenden Phase. Aufgrund der d-Wellen Symmetrie $\Delta = \Delta(\mathbf{k})$, wie in Abbildung 2-10 gezeigt, tritt an diesen Punkte keine Energielücke auf [75].

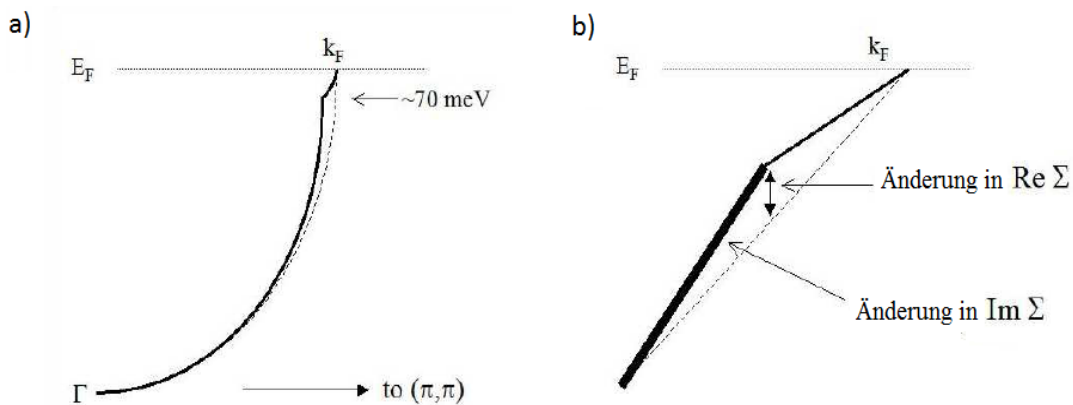


Abbildung 2-12 a) Schematische Darstellung des Auftretens eines „Kinks“ bei ~ 70 meV Bindungsenergie, wie er bei lochdotiertem Bi2212 beobachtet wird. b) Zusammenhang zwischen Real- und Imaginärteil der Selbstenergie, welche durch das Auftreten eines „Kinks“ beeinflusst werden. Die gestrichelte Linie beschreibt das unbeeinflusste, freie-Elektronen-artige Band. Nach [75].

Das Interesse an dem physikalischen Ursprung der zu den „Kinks“ führenden Elektron-Boson-Wechselwirkung liegt in der möglichen Verbindung zu dem Paarungsmechanismus in den Kupraten begründet. Analog zu der Elektron-Phonon-Wechselwirkung der konventionellen BCS-Supraleiter könnte, wie bereits erwähnt, eine entsprechende Elektron-Boson-Wechselwirkung zur der Hochtemperatursupraleitung in den Kupraten führen. Da das Auftreten eines „Kinks“ ebenfalls durch eine solche begründet werden kann, liegt die Vermutung nahe, dass durch die Untersuchung dieser die relevante Wechselwirkung enthüllt werden kann.

3 Experimentelle Grundlagen

Die in der vorliegenden Arbeit verwendete experimentelle Technik ist die zeit- und winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie, welche im folgenden Kapitel behandelt wird. Die dazu relevanten physikalischen Grundlagen, auf denen diese Methode basiert, werden zunächst anhand der statischen Photoemission mit und ohne Winkelauflösung beschrieben, bevor anschließend die für diese Arbeit essentielle Zeitauflösung betrachtet werden.

3.1 Photoemissionsspektroskopie

Mithilfe der auf dem von Albert Einstein entdeckten photoelektrischen Effekt [76] basierende Photoemissionsspektroskopie (PES), welche die Energie und den Impuls emittierter Photoelektronen misst, ist es möglich, die elektronische Struktur nicht-isolierender Festkörper zu untersuchen. Winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (ARPES) bietet direkten Zugang zu der Einteilchen-Spektralfunktion $A(\vec{k}, E)$ [7, 77] im reziproken Raum und gehört zu den etablierten Methoden im Bereich der Festkörperphysik. Insbesondere in Bezug auf die Untersuchung der elektronischen Korrelationseffekte der in dieser Arbeit behandelten Kuprate [7, 78], war die Photoemissionsspektroskopie von fundamentaler Bedeutung.

Die kinetische Energie E eines Elektrons, das aufgrund der Absorption eines Photons mit der Energie $h\nu$, welche oberhalb der Austrittsarbeit ϕ des Festkörpers liegt, emittiert wurde, ist gegeben durch

$$(3.1) \quad E = h\nu - \phi - E_B ,$$

mit der Bindungsenergie E_B des Elektrons relativ zum Ferminiveau. Somit können die Bindungsenergien der elektronischen Zustände eines Festkörpers durch Messung des Energiespektrums der emittierten Photoelektronen bestimmt werden. Ebenfalls kann durch Messung des Emissionswinkels der Parallelimpuls \vec{k}_{\parallel} eines Elektrons ermittelt werden, welcher während des Photoemissionsprozesses erhalten bleibt (siehe 0). Der genaue Zusammenhang zwischen der gemessenen PES Intensität und der spektralen Funktion des Systems ist gegeben durch [77]

$$(3.2) \quad I(\vec{k}_{\parallel}, E) = Mf(E, T)A(\vec{k}_{\parallel}, E) ,$$

mit dem Matrixelement M der Photoemission und der Fermi-Dirac Verteilung f . Aufgrund der engen Verknüpfung mit der spektralen Funktion, welche die Wahrscheinlichkeit angibt, dass aus einem sich in seinem elektronischen Grundzustand befindenden System ein Elektron entfernt werden kann, ist ARPES empfindlich auf Vielkörpereffekte. Diese Effekte beschreiben Wechselwirkungen aller Art, welche die elektronische Dispersion eines Systems beeinflussen wie zum Beispiel Elektronenkorrelationen oder Elektron-Boson Wechselwirkungen jeglicher Art (Abschnitt 2.2.3). Die Beiträge solcher Vielkörpereffekte können durch die Selbstenergie Σ des elektronischen Systems beschrieben werden.

Aufgrund der geringen Austrittstiefe der Photoelektronen [79] ist ARPES eine vornehmlich oberflächenempfindliche Messmethode. Die mittlere freie Weglänge der Elektronen innerhalb eines Festkörpers ist weitgehend von dem Material unabhängig und variiert stark mit der kinetischen Energie. Dieser Zusammenhang wird typischerweise anhand der „universellen Kurve“ deutlich gemacht, welche in Abbildung 3-1 dargestellt ist. Diese erhält ein ausgeprägtes Minimum bei einer kinetischen Energie von $E_{kin} \sim 40 \text{ eV}$, bei welcher PES folglich die größte Oberflächenempfindlichkeit aufweist. Für niederenergetische Elektronen, die wie in vorliegender Arbeit durch Anregung mit Photonenenergien von $h\nu = 6 \text{ eV}$ entstehen, beträgt die Austrittstiefe $\sim 30 \text{ \AA}$, wobei der Grad der Oberflächenempfindlichkeit im Detail durch das Matrixelement bestimmt wird.

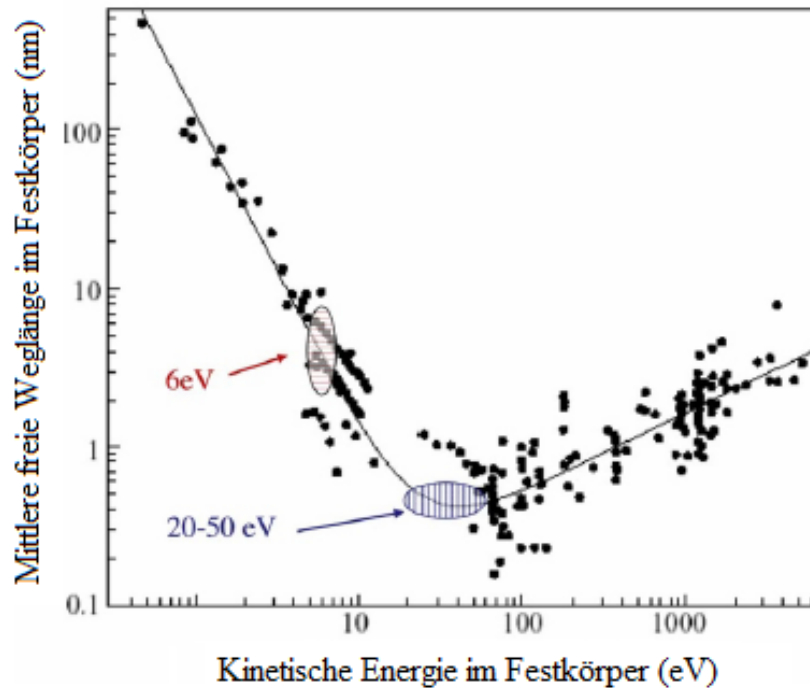


Abbildung 3-1 Die „universelle Kurve“ der mittleren freien Weglänge eines Elektrons im Festkörper [79].

Weiterhin ist die Tatsache zu beachten, dass das betrachtete elektronische System durch die Erzeugung eines Photoelektrons von seinem N -Teilchen Anfangszustand in einen angeregten $(N-1)$ -Endzustand übergeht. Ein gemessenes Spektrum spiegelt folglich denjenigen Zustand wider, bei dem ein Elektron durch Photoemission aus dem System herausgelöst worden ist. Hierbei wird die Annahme gemacht, dass das zurückbleibende, angeregte $(N-1)$ -Teilchensystem nicht mit dem erzeugten Photoelektron wechselwirkt, da die Relaxation des Photolochs auf einer sehr viel längeren Zeitskala stattfindet, als die des Austretens des Elektrons aus dem Festkörper (engl. „sudden approximation“). Der Vergleich von Spektren, aufgenommen bei verschiedenen Photonenenergien zeigt zudem, dass diese Annahme auch bei sehr kleinen kinetischen Energien, wie sie in vorliegender Arbeit behandelt werden, gerechtfertigt ist [80].

3.1.1 Das Dreistufen-Modell der Photoemission

Eine exakte Beschreibung des Photoemissionsprozesses würde eine genaue Betrachtung sämtlicher Start- und Endzustände des elektronischen Systems notwendig machen. Da ein Vielkörperproblem dieser Komplexität nicht zu bewältigen ist, existieren vornehmlich zwei Konzepte, welche den Vorgang der Photoemission phänomenologisch beschreiben. Diese sind das Dreistufen- und das Einstufen-Modell [77] der Photoemission und sollen im Folgenden beschrieben werden.

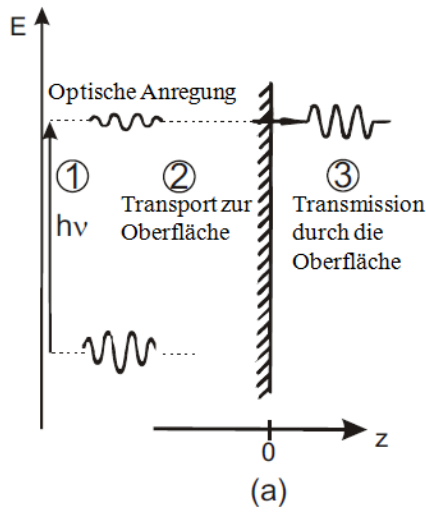
Das Dreistufen-Modell, siehe Abbildung 3-2 (a), unterteilt den Photoemissionsprozess in 3 Stufen:

1. Lokalisierte Anregung eines Elektrons von seinem Anfangs- in einen Endzustand oberhalb der Vakuumenergie. Aufgrund des niedrigen Photonenimpulses geschieht diese Anregung nahezu vertikal innerhalb des reduzierten Zonenschemas und erfolgt ohne nennenswerten Impulsübertrag.
2. Transport des Elektrons zur Oberfläche des Festkörpers. Hierbei können die Energie und der Impuls der Elektronen durch Streuprozesse wie Elektron-Elektron Streuung oder Streuung an Gitterdefekten modifiziert werden, welche dann zum spektralen Hintergrund in Form von Sekundärelektronen beitragen.
3. Austritt des Elektrons aus dem Festkörper in das Vakuum. Hierbei bleibt der Parallelimpuls \vec{k}_{\parallel} des Photoelektrons erhalten, während die senkrechte Komponente \vec{k}_{\perp} durch das Oberflächenpotential des Festkörpers modifiziert wird.

3.1.2 Das Einstufen-Modell der Photoemission

Eine detailliertere Beschreibung liefert das Einstufen-Modell. Hierbei wird der Photoemissionsprozess als Kopplung einer Bloch-Welle innerhalb des Festkörpers an eine ebene Welle außerhalb des Festkörpers beschrieben, was in einer innerhalb des Kristalls exponentiell abfallenden Wellenfunktion resultiert (siehe Abbildung 3-2 (b)). Dies kann ebenfalls als Zeitumkehr eines auf die Oberfläche auftreffenden Elektrons gesehen werden (inverser LEED-Zustand), welches innerhalb seiner mittleren freien Weglänge in den Festkörper eindringt.

3-Stufen-Modell



1-Stufen-Modell

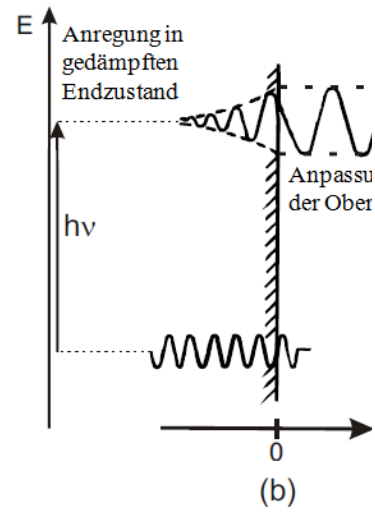


Abbildung 3-2 Das Dreistufen- (a) und das Einstufen-Modell (b) der Photoemission. Nach [77].

3.1.3 Winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (ARPES)

Da das System parallel zur Oberfläche, sowohl innerhalb als auch außerhalb des Festkörpers, innerhalb eines Einkristalls, translationsinvariant ist, bleibt die ebenfalls parallel zur Oberfläche verlaufende Komponente des Elektronenimpulses \vec{k}_{\parallel} während des Photoemissionsprozesses erhalten und kann somit im Falle einer winkelaufgelösten Messung, bestimmt werden (Abbildung 3-3). Geht man von dem einfachen Modell des freien Elektronengases aus, so besitzen die emittierten Photoelektronen im Vakuum eine Energie von

$$(3.3) \quad E = \frac{\hbar^2}{2m_e} \vec{k}^2 \quad ,$$

mit der Elektronenmasse m_e und dem Plankschen Wirkungsquantum \hbar . Tritt ein Elektron unter einem Winkel θ_e aus dem Festkörper aus, so ergibt sich, gemäß Abbildung 3-3, für den Parallelimpuls \vec{k}_{\parallel} folgender Zusammenhang:

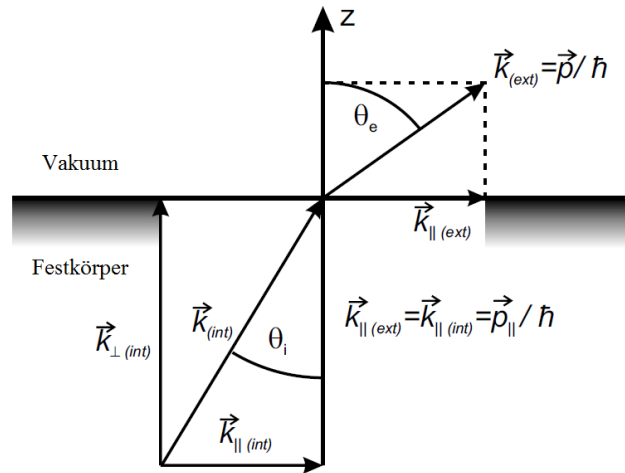


Abbildung 3-3 Vektorielle Darstellung der Impuls-Beziehungen bei Photoemission eines Elektrons unter dem Austrittswinkel θ_e . Da der Parallelimpuls $\vec{k}_{||}$ erhalten bleibt, kann dieser durch winkelaufgelöste Detektion bestimmt werden. Nach [77]

$$(3.4) \quad \vec{k}_{||} = \sin \theta_e \sqrt{\frac{2m_e}{\hbar^2} E_{kin}} \quad .$$

Die winkelaufgelöste Detektion liefert somit detaillierte Informationen über die parallel zur Oberfläche verlaufende Dispersion eines Festkörpers. Aufgrund der Tatsache, dass die Translationsinvarianz für die senkrechte Impulskomponente \vec{k}_{\perp} beim Verlassen des Festkörpers nicht gegeben ist, stellt diese keine Erhaltungsgröße des Photoemissionsprozesses dar und kann folglich nicht exakt bestimmt werden. Jedoch wird unter der Annahme, dass auch innerhalb des Festkörpers die angeregten Elektronen durch ein nahezu freies Elektronengas beschrieben werden können, deutlich, dass die senkrechte Impulskomponente eines Photoelektrons von der Energie des anregenden Photons abhängt. Dies liegt darin begründet, dass bei gegebener Photonenenergie aufgrund der Energie- und Impulserhaltung nur entsprechende Übergänge innerhalb des Festkörpers erlaubt sind. Variiert demnach die durch PES bestimmte Bindungsenergie eines Zustandes mit der Photonenenergie, so lassen sich daraus Rückschlüsse in Bezug auf die Einteilung in Volumen- oder Oberflächenzustand ziehen, da letzterer rein zweidimensional und daher von \vec{k}_{\perp} unabhängig ist. Materialien bzw.

Bänder, deren Energiedispersionen stark mit \vec{k}_\perp variieren, eignen sich demnach nur bedingt zur winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie, da nicht davon ausgegangen werden kann, dass die bei verschiedenen Winkeln bestimmten Bindungsenergien das gleiche \vec{k}_\perp aufweisen. Hingegen sind Materialien, die, wie das in vorliegender Arbeit behandelte Bi2212, eine geschichtete Kristallstruktur aufweisen (siehe 2.2.1), in höherem Maße für ARPES geeignet, da sie aufgrund der schwachen Bindungen entlang der z-Achse des Kristalls nur eine geringe \vec{k}_\perp -Abhängigkeit aufweisen.

3.2 Zeit- und winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (trARPES)

Ein wichtiger Nachteil der winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie ist die Tatsache, dass diese lediglich den Zugang zu der besetzten Bandstruktur mit $E < E_F$ ermöglicht. Zwar lassen sich durch Verfahren wie die Division durch die temperaturabhängige Fermi-Dirac Verteilung prinzipiell kleine Teile der unbesetzten Bandstruktur untersuchen, sind diese jedoch stets auf kleine Energiefenster über dem Fermi-niveau beschränkt. Um dennoch die Spektroskopie der unbesetzten Bandstruktur zu ermöglichen, wurde in den 1980er Jahren die zeit- und winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (trARPES) entwickelt [81, 82]. Hierbei wird der Festkörper zunächst mit Hilfe eines femtosekunden Laserpulses (Anregungspuls), dessen Photonenenergie kleiner ist als die Austrittsarbeit des Materials, angeregt, wodurch unbesetzte elektronische Zustände oberhalb E_F transient bevölkert werden. Anschließend kann die so angeregte Probe mit Hilfe eines ebenfalls ultrakurzen Laserpulses (Abfragepuls) gemäß oben beschriebener Methoden spektroskopiert werden. Durch Variation des zeitlichen Abstandes zwischen Anrege- und Abfragepuls bietet trARPES somit Zugang zur zeitlichen Entwicklung der transienten spektralen Funktion $A(\omega, \vec{k}, t)$ und folglich zur Nichtgleichgewichtsdynamik der besetzten und unbesetzten Zustände.

Typischerweise werden in der zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie Anregungsfluenzen von ca. $F \sim 50 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ bis $F \sim 2 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ verwendet (Für Materialien, welche extrem stark auf optische Anregungen reagieren, werden auch deutlich kleinere Fluenzen von $F < 10 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ verwendet. Ein Beispiel hierfür ist der supraleitende Zustand

des hier untersuchten Kuprates Bi2212 [19]. Dies ist in der Regel ausreichend um einige Prozent der Elektronen nahe des Ferminiveaus anzuregen. Abbildung 3-4 zeigt schematisch den typischen Verlauf einer optischen Anregung sowie der transienten Elektronenpopulation in Metallen. Vor dem Eintreffen des Anregepuls befindet sich das System in einem Gleichgewichtszustand, welcher durch eine Fermi-Dirac Verteilung, gemäß einer Temperatur des elektronischen Systems $T_{el} = T_0$, beschrieben wird. Durch die optische Anregung werden Elektronen mit $E < E_F$ über das Ferminiveau angeregt, was eine starke nicht-thermische Verteilung, welche nicht länger durch eine Fermi-Dirac Funktion beschrieben werden kann, zur Folge hat. Anschließend relaxiert das System, hauptsächlich durch Elektron-Elektron Streuprozesse, auf einer Zeitskala von einigen zehn bis einigen hundert Femtosekunden, so dass es erneut durch eine Fermi-Dirac Verteilung mit einer Temperatur von $T_{el} > T_0$ beschrieben werden kann [82-84].

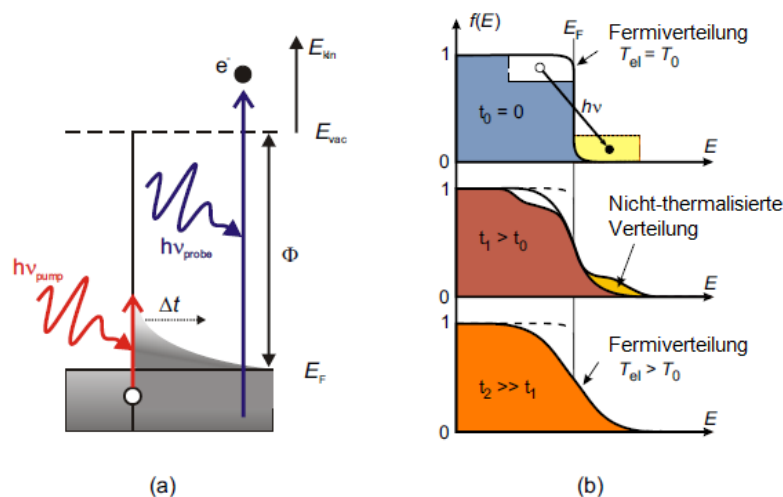


Abbildung 3-4 a) Schematische Darstellung der zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektroskopie. Ein intensiver Anregepuls mit einer Photonenenergie kleiner als die Austrittsarbeit des Festkörpers erzeugt eine Population von angeregten Elektronen oberhalb des Ferminiveaus. Anschließend können mithilfe eines zeitverzögerten Abfragepulses die besetzte Bandstruktur sowie die transient erzeugte Population über E_F untersucht werden. b) Darstellung der zeitabhängigen Elektronenverteilung. Eine anfänglich durch eine Fermi-Dirac Verteilung bei Temperatur T_0 beschreibbare Elektronenpopulation wird durch den Anregepuls in eine nicht-thermalisierte, nicht-Gleichgewichtsverteilung versetzt. Durch Elektron-Elektron Streuprozesse relaxiert das System anschließend in eine erneut thermalisierte Fermiverteilung mit einer erhöhten elektronischen Temperatur $T_{el} > T_0$ [84, 85].

Die Anregung einer großen Zahl von Ladungsträgern kann einen starken Einfluss auf die elektronische Struktur eines Festkörpers haben. Durch Umverteilung der Ladungsträger und damit begleitete plötzliche Änderung der Elektronendichte in der Nähe des Fermi-Niveaus, kann es zum Beispiel zu Veränderungen der elektronischen Abschirmung kommen, wodurch sich die effektive Anzahl der Ladungsträger ändert und das System mit einer Anpassung des chemischen Potentials reagiert, so wie es in vorliegender Arbeit an Bi2212 beobachtet wurde und ausführlich in Abschnitt 5.3 diskutiert wird. Durch die Analyse der zeit-, energie- und winkelaufgelösten Spektralfunktion bietet trAPRES zudem Zugang zu kohärenten Anregungen, wodurch beispielsweise mögliche Phasenübergänge im Nichtgleichgewichtszustand und die damit verbundenen Zeitskalen und Wechselwirkungen untersucht werden können [25, 86, 87].

4 Experimentelle Aufbauten

Folgendes Kapitel beschäftigt sich mit den experimentellen Anlagen welche im Rahmen der vorliegenden Arbeit zur Anwendung kamen. Nachdem in Abschnitt 4.1 das zu Beginn dieser Arbeit neu installierte Lasersystem behandelt wird, folgt in Abschnitt 4.2 eine Beschreibung des zur Messung der in Abschnitt 5 analysierten und diskutierten Bi2212-Daten verwendeten experimentellen Aufbaus. Darüber hinaus behandelt der letzte Abschnitt dieses Kapitels (4.3) ein neues Experiment zur Photoemissionsspektroskopie welches im Rahmen dieser Arbeit konzipiert und neu aufgebaut worden ist. Neben der detaillierten Beschreibung sämtlicher dafür angefertigter Komponenten wie z.B. der μ -Metall Ultrahochvakuumkammer oder des 6-Achsen Manipulationssystems sind zudem auch erste Testmessungen durchgeführt worden anhand derer das neue Experiment bereits teilweise charakterisiert werden konnte.

4.1 Das Laser System

In vorliegender Arbeit wurde die Erzeugung der hier verwendeten, ultrakurzen Laserpulse im infraroten (IR) und ultravioletten (UV) Spektralbereich mit Hilfe eines kommerziellen Lasersystems der Firma Coherent realisiert. Abbildung 4-1 zeigt schematisch den optischen Aufbau, so wie er zur Erzeugung des Anrege- und Abfragepulses verwendet wurde. Gemäß der Heisenbergschen Unschärferelation wird für die Generierung zeitlich kurzer Pulse ein breitbandiges Laserspektrum in der Energiedomäne benötigt. Aufgrund seines breiten Emissionsspektrums von 670 – 1070 nm bei einer zentralen Wellenlänge von $\lambda \approx 800$ nm ist mit Titan dotiertes Saphir (Ti:Sa) für diesen Zweck besonders geeignet und ermöglicht somit die Erzeugung von nur einigen Femtosekunden dauernden Laserpulsen. Ein weiterer Vorteil

von Ti:Sa besteht in seinem Absorptionsband bei 500 – 600 nm Wellenlänge, wodurch effizientes Pumpen des Lasermediums mit frequenzverdoppelten Festkörperlaser ermöglicht wird (Nd:YAG, Nd:YVO₄, 532nm). Eine weitere Voraussetzung für die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse ist die sogenannte Modenkopplung (engl. *mode-locking*). Die Modenkopplung bezeichnet die Notwendigkeit einer konstanten Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Resonatormoden, welche im Falle des Ti:Sa Lasers passiv gemäß des linearen optischen Kerr-Effektes realisiert wird [88].

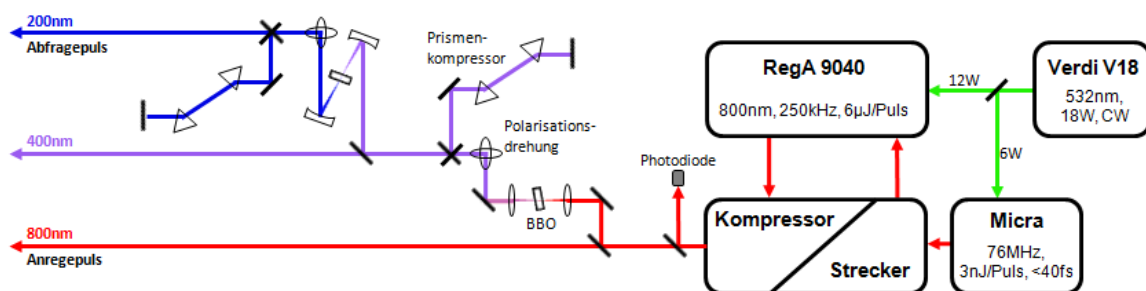


Abbildung 4-1 Optische Aufbau des Femtosekundenlasersystems. Der Verdi V18 dient als Pumplaser für den Oszillator (Micra) sowie für den regenerativen Verstärker (RegA 9040). Nach Verstärkung und anschließender Kompression stehen ca. 1,6 W Ausgangsleistung bei einer Pulsdauer von <50 fs zu Verfügung, aus denen im Anschluss durch zweimalige Frequenzverdopplung mit Hilfe von β -Bariumborat (BBO) Kristallen die 200 nm Abfragepulse erzeugt werden.

Ausgangspunkt des Aufbaus ist ein 18 W Nd:YVO₄ Dauerstrich-Festkörperlaser (CW) der Firma Coherent (Verdi V-18), welcher als Pumplaser für den regenerativen Verstärker (RegA 9050) sowie für den Ti:Sa Oszillator dient und zu Beginn dieser Arbeit installiert wurde. Der mit 6 der 18 W Ausgangsleistung des Verdi gepumpte Ti:Sa Oszillator erzeugt ultrakurze Laserpulse mit einer Dauer von < 40 fs bei einer zentralen Wellenlänge von $\lambda \approx 800$ nm. Die mittlere Energie pro Puls beträgt ~ 3 nJ. Da dies für die Untersuchung von Materialien bei starken optischen Anregungen nicht ausreichend ist, werden die vom Micra erzeugten Pulse verstärkt. Dies geschieht in dem regenerativen Verstärker (RegA 9040), welcher mit den restlichen 12 W der 18 W Ausgangsleistung des Verdi gepumpt wird. Um Beschädigungen des Ti:Sa Kristalles in dem regenerativen Verstärker durch zu große Energien, bzw. Leistungsspitzen zu vermeiden, werden die Pulse vor der Verstärkung zunächst zeitlich

ausgedehnt (Strecker). Die eigentliche Verstärkung wird realisiert, indem in einem weiteren Ti:Sa Kristall eine starke Besetzungsinversion erzeugt wird, welcher anschließend von dem zu verstärkenden Laserpuls mehrfach durchlaufen wird. Nach typischerweise 20 - 30 Durchläufen wird der dann verstärkte Puls mit Hilfe eines akustooptischen Modulators aus dem Resonator ausgekoppelt und anschließend wieder auf eine Dauer von einigen Femtosekunden zeitlich komprimiert (Kompressor). Durch den RegA wird somit die Energie pro Puls auf $\sim 6 \mu\text{J}$ bei einer Repititionsrate von 250 kHz erhöht, wobei die erzeugten Pulse parallel zum Lasertisch polarisiert sind (p-Polarisation).

Aus den verstärkten Laserpulsen bei einer zentralen Wellenlänge von $\lambda = 800 \text{ nm}$ mit einer Photonenenergie von $h\nu = 1,5 \text{ eV}$ werden anschließend durch zweimalige Frequenzverdopplung die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Abfragepulse mit einer Wellenlänge von $\lambda = 200 \text{ nm}$ (entsprechend einer Photonenenergie von $h\nu = 6 \text{ eV}$) erzeugt. Die Verdopplung der Frequenz geschieht durch die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) in β -Bariumborat (BBO) Kristallen. Da nach diesem Prozess die Polarisation der erzeugten, frequenzverdoppelten Strahlung senkrecht zum Lasertisch verläuft (s-Polarisation), muss diese durch ein Periskop wieder in die anfängliche, parallel zum Lasertisch verlaufenden, Orientierung gebracht werden. Zudem werden die Pulse nach Durchlaufen der SHG Kristalle mit Hilfe von optischen Prismenkompressoren komprimiert, wodurch eine Pulsdauern der letztlich erzeugten Abfragepulse von $\sim 80 \text{ fs}$ erreicht wird bei einem Photonenfluss in der Größenordnung von $\sim 10^{13} \text{ Photonen/s}$.

Nach der Erzeugung des Anrege- und Abfragepulses besteht die nächste experimentelle Herausforderung in der Einkopplung der Laserstrahlen in die Ultrahochvakuumkammer. Für die Durchführung eines erfolgreichen trARPES Experimentes ist es notwendig, dass beide Laserpulse am Ort der Probe, welcher sich im Fokus der Spektrometeröffnung befindet, zeitlich sowie räumlich überlappen. Alle hierfür notwendigen Komponenten befinden sich auf einer abtrennbaren Lochrasterplatte, deren optischer Aufbau schematisch in Abbildung 4-2 dargestellt ist.

Um den räumlichen Überlapp der beiden Strahlen einzustellen, können diese mit Hilfe eines Klappspiegels auf eine Lochblende ($d = 100 \mu\text{m}$) justiert werden. Da sich die Lochblende im gleichen Abstand zum Klappspiegel befindet wie der Fokus der Spektrometeröffnung, geht mit dem Durchgang beider Strahlen durch die Lochblende ein Überlappen am Ort der Probe einher. Für den zeitlichen Überlapp ist auf der Lochrasterplatte

eine Verzögerungsstufe installiert, wodurch die optische Weglänge des Anregepulses verzögert bzw. verkürzt werden kann. Damit der zeitliche Überlapp beider Pulse, sowie eine gewünschte Verzögerung, mit Hilfe der Verzögerungsstufe überhaupt eingestellt werden kann ist es notwendig, dass sich die optischen Weglängen der beiden Strahlen bereits vor Erreichen der Verzögerungsstufe nicht mehr als um 5-10 cm unterscheiden (entsprechend der Distanz um welche die Verzögerungsstufe verstellt werden kann). Diese Genauigkeit kann in der Regel durch konventionelles Abmessen der einzelnen optischen Wege mit Hilfe eines normalen Maßbandes erreicht werden.

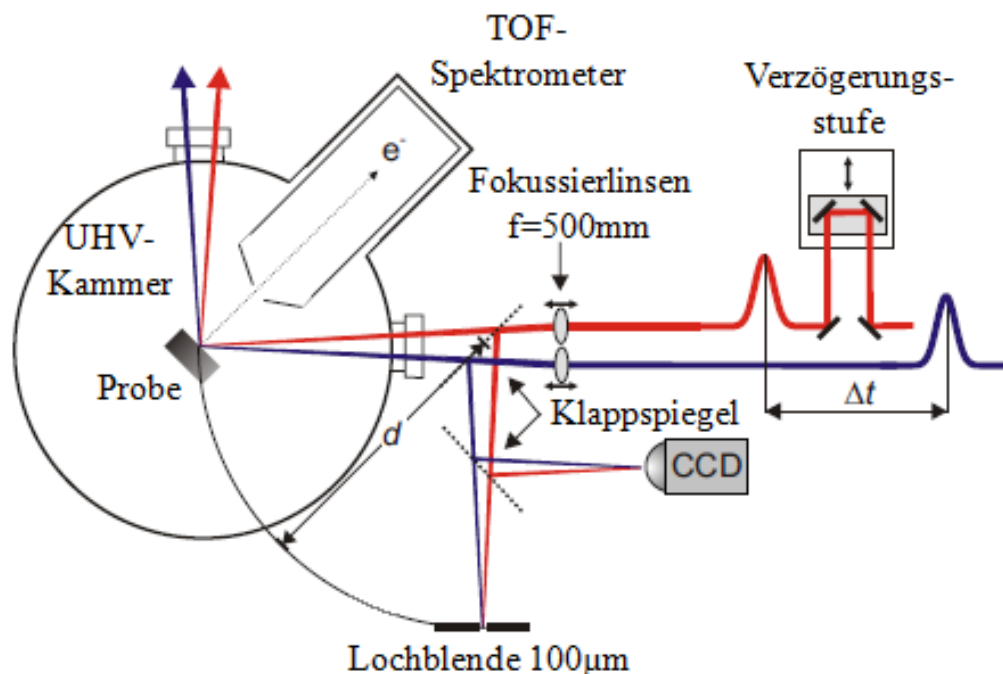


Abbildung 4-2 Strahleinkopplung in die Hochvakuumkammer. Anrege- (rot) und Abfragepuls werden unabhängig voneinander mit zwei Linsen ($f = 500 \text{ mm}$) auf die Probe fokussiert, welche sich vor der Spektrometeröffnung befindet. Der räumliche Überlapp wird mit Hilfe eines Klappspiegels realisiert, welcher die Strahlen auf eine Lochblende umlenkt, die sich im gleichen Abstand wie die Probe befindet. Durch eine Verzögerungsstufe kann der optische Weg des Anregepulses verlängert werden, wodurch sich der zeitliche Abstand des Auftreffens der beiden Pulse auf die Probe einstellen lässt. Nach [35]

Die spektralen Profile des Anrege- und Abfragepulses werden mit Hilfe eines kommerziell verfügbaren Spektrometers der Firma Ocean Optics bestimmt. Dies ergibt eine typische spektrale Breite von ~ 50 meV bzw. ~ 60 meV für den Anrege- bzw. Abfragepuls. Zur Bestimmung des zeitlichen Profils des Anregepulses dient ein FROG (engl. frequency-resolved optical grating) [89], wodurch in der Regel Pulsdauern der Anregepulse von ~ 40 fs gemessen werden. Da die Dauer von Pulsen im UV-Bereich durch einen FROG nicht messbar ist, wird diese direkt mit Hilfe des trARPES Spektrums bestimmt. Anhand einer Kreuzkorrelation von hoch angeregten Elektronen, welche keine signifikante Lebensdauern aufweisen, ergibt sich eine Pulsdauer der Abfragepulse von typischerweise ~ 80 fs.

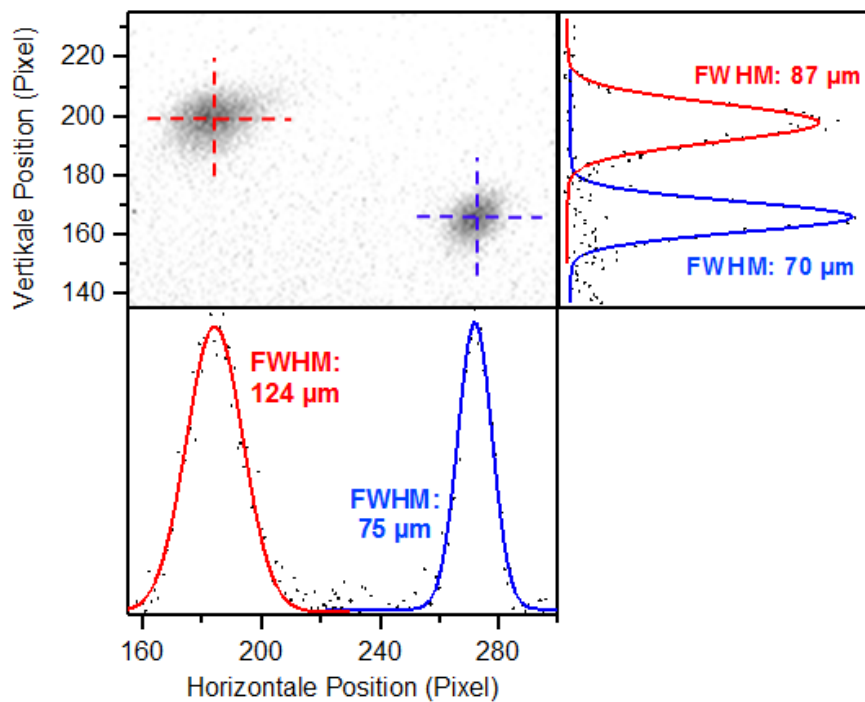


Abbildung 4-3 Mit CCD Kamera aufgenommene Strahlprofile des Anrege- und Abfragepulses. Die horizontale und vertikale Breite der Pulse werden anhand der Halbwertsbreite (FWHM) einer angepassten Gaußkurve bestimmt. Um eine homogene Anregung innerhalb des abgefragten Bereiches sicherzustellen, ist der Durchmesser des Anregepulses in der Regel etwas größer als der des Abfragepulses.

Zur Bestimmung der Fluenz muss zunächst das Strahlprofil des Anregepulses bestimmt werden. Dies geschieht mit Hilfe einer CCD Kamera, welche in ähnlicher Weise durch

Klappspiegel in den Strahlengang gebracht werden kann wie die für den räumlichen Überlapp verwendete Lochblende. Typische, so aufgenommene, Strahlprofile sind in Abbildung 4-3 dargestellt, wobei durch Anpassung einer Gaußkurve die Strahldurchmesser bestimmt wurden. Um eine möglichst homogene Anregung innerhalb des abgefragten Bereiches zu gewährleisten, wird der Durchmesser des Anregepulses in der Regel etwas größer gewählt als der des Abfragepulses. Anhand der Halbwertsbreiten $2a$ und $2b$ der angepassten Gaußkurven an den Anrege- und Abfragepuls, kann die einfallende Anregefluenz F_{in} mit folgender Formel bestimmt werden:

$$(4.1) \quad F_{in} = \frac{TP \cos \alpha}{r \pi ab}$$

Hierbei ist $T = 0,95$ der Transmissionskoeffizient des Eintrittsfensters an der Ultrahochvakuumkammer (Abschnitt 4.2), P die vor dem Eintritt in die Kammer gemessene Laserleistung, r die Repetitionsrate des Lasers und α der Einfallswinkel des Lasers relativ zur Probenormalen, welcher zur Bestimmung der Projektion des Strahlprofils auf die Probe benötigt wird (Abbildung 4-4).

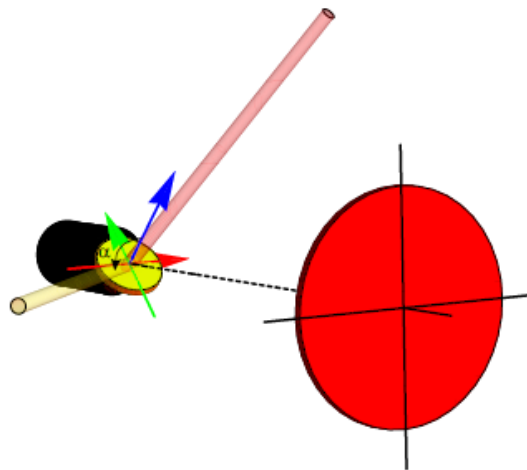


Abbildung 4-4 Geometrische Darstellung der Projektion des einfallenden Laserstrahls auf die Probenoberfläche (gelbe Scheibe) vor dem Spektrometer (rote Scheibe). Das Koordinatensystem der Probe ist durch den roten, blauen und grünen Pfeil gegeben. Der Einfallswinkel α , welcher zur Bestimmung der Anregefluenz benötigt wird, wird von einfallendem Laserstrahl (gelbe Röhre) und der Oberflächennormalen (blauer Pfeil) aufgespannt. Der durch die Probe reflektierte Laserstrahl ist durch die rote Röhre dargestellt [35].

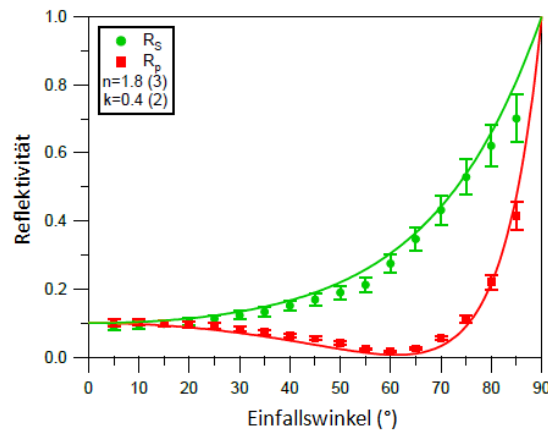


Abbildung 4-5 Experimentell bestimmte Reflektivität von Bi2212 für s- (R_s) und p-polarisiertes (R_p) Licht. Eine Anpassung der Fresnel Formel an die gemessenen Datenpunkte liefert die Fresnelkoeffizienten $n = 1,8$ und $k = 0,4$ [35].

Liegt eine senkrechte Orientierung der Probenoberfläche in Bezug auf die von Spektrometerachse und einfallendem Strahl aufgespannte Ebene vor, dann ist α durch die polare Rotation der Probe gegeben. Im Falle einer komplizierteren Ausrichtung der Probenoberfläche ergibt sich α anhand des Winkels zwischen einfallendem Strahl und der Oberflächennormalen.

Die absorbierte Fluenz

$$(4.2) \quad F_{abs} = F_{in} - F_{refl} = (1 - R)F_{in}$$

wird durch die reflektierte Fluenz F_{refl} und somit durch die Reflektivität R der Probe unter den gegebenen geometrischen Bedingungen bestimmt, welche wiederum stark von dem Einfallswinkel sowie von der Polarisation des einfallenden Lichtes abhängt. Der Verlauf der Reflektivität wird durch die Fresnel Formeln [74] beschrieben und ist abhängig von einem komplexen Brechungsindex $N = n + ik$. Für das in vorliegender Arbeit untersuchte Material Bi2212 wurde die Reflektivität für s- und p-polarisiertes Licht als Funktion des Einfallswinkels in früheren Arbeiten experimentell bestimmt [35]. Das Ergebnis ist in Abbildung 4-5 dargestellt.

4.2 Photoelektronenspektrometer und Vakuumkammer

Nach der Erzeugung und entsprechenden Modifizierung der Laserpulse ist der Aufbau der Ultrahochvakuumkammer, innerhalb welcher die eigentlichen Messungen stattfinden, der zweite wichtige Teil eines erfolgreichen trARPES Experimentes. Aufgrund der Tatsache, dass ARPES eine oberflächensensitive Technik ist (3.1), ist die Oberflächenqualität einer zu untersuchenden Probe von entscheidender Bedeutung. Um die Qualität einer Oberfläche auch über einen längeren Zeitraum zu gewährleisten und somit die Adsorption von Restgasatomen zu minimieren, sind Ultrahochvakuumbedingungen (UHV) bei Drücken von $p < 10^{-10}$ mbar erforderlich. Die Zeit, in der sich bei diesen Bedingungen auf der Probenoberfläche eine Monolage von Restgasatomen bildet liegt bei ~ 10 Stunden, wohingegen dies bei einem Druck von $p \sim 10^{-6}$ mbar bereits nach einer Sekunde der Fall ist [90].

Die UHV-Kammer, welche für alle im Zuge dieser Arbeit an Bi2212 durchgeführten Experimente verwendet wurde, besteht aus zwei durch ein Absperrventil voneinander getrennten Ebenen, welche übereinander angeordnet sind. Die obere Präparationsebene, welche mit einer Vielzahl von Instrumenten zur Probenpräparation ausgestattet ist (Abbildung 4-6), dient in erster Linie zur Vorbereitung der Oberflächen der zu untersuchenden Proben. Hier können die Proben mit Hilfe eines Transfersystems eingeschleust werden, ohne dass das Vakuum in diesem Vorgang gebrochen werden muss.

Anschließend können die Proben in die untere Spektrometerebene gebracht werden, in welcher die eigentlichen Messungen durchgeführt werden. In dieser unteren Ebene sind zwei Flugzeitspektrometer (4.2.1 und 4.2.2) installiert, welche je nach Bedarf mit Hilfe von Translationsvorrichtungen in die entsprechende Messposition gefahren werden können.

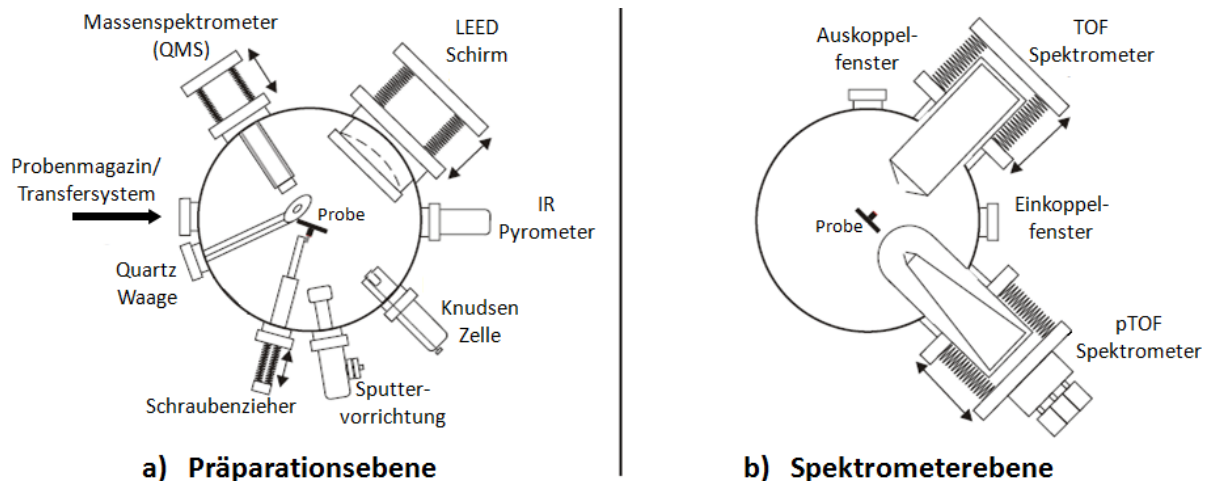


Abbildung 4-6 Querschnitt der UHV-Kammer. a) Die obere Präparationsebene, welche mit verschiedenen Instrumenten zur Probenpräparation ausgestattet ist. Die Proben können mittels eines Transfersystems in diese Ebene transferiert werden. Die vorbereiteten Proben werden hier mit Hilfe des abgebildeten Schraubenziehers gespalten. b) Die untere Spektrometerebene, welche durch ein Absperrventil von der Präparationsebene getrennt ist. Die Probe kann hier je nach Bedarf in den Fokus eines der beiden Spektrometer gebracht werden, welche mit Hilfe von Translationsvorrichtungen in die Messposition bewegt werden können. Nach [35]

Der Druck in der oberen Präparationsebene beträgt typischerweise $p < 10^{-10}$ mbar, welcher durch ein hier angebrachtes Pumpsystem bestehend aus zwei Turbo-Molekularpumpen sowie einer konventionellen, vierstufigen Membranpumpe erzeugt wird. Zusätzlich ist an der unteren Ebene eine Ionengerter- in Kombination mit einer Titan-Sublimationspumpe angebracht. Dies führt dazu, dass der Druck in der Spektrometerebene auf $\sim 3 \cdot 10^{-11}$ mbar verringert wird, wodurch die notwendige Oberflächenqualität über mehrere Stunden bis hin zu einigen Tagen sichergestellt ist.

Abbildung 4-7 zeigt den Probenhalter an dem unteren Teil des an der UHV-Kammer installierten 400 mm langen flüssig-Helium Kryostaten. Zum Zwecke der Temperaturkontrolle verfügt dieser über eine Heizspule sowie eine Siliziumdiode zur Temperaturmessung welche beide über einen Proportional-Integral-Differenzial (PID) Regler (Lakeshore 330) angesteuert werden können, mit dessen Hilfe sich die Temperatur am Ort der Probe in einem Bereich zwischen ~ 30 K und ~ 340 K mit einer Genauigkeit von unter 1 K einstellen lässt. Der Kryostat ist an einem Manipulator befestigt, welcher einen vertikalen Hub von 400 mm

sowie eine laterale Bewegung innerhalb eines Radius von 12,5 mm ermöglicht. Zusätzlich kann mit Hilfe einer differentiell gepumpten Drehdurchführung der Kryostat bzw. der Probenhalter um 360° frei um die vertikale Achse rotiert werden. Alle linearen Bewegungen werden durch Schrittmotoren gesteuert wodurch eine Genauigkeit von $\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ erreicht wird, während die Rotation manuell mit einer Präzision von $< 1^\circ$ eingestellt werden kann.

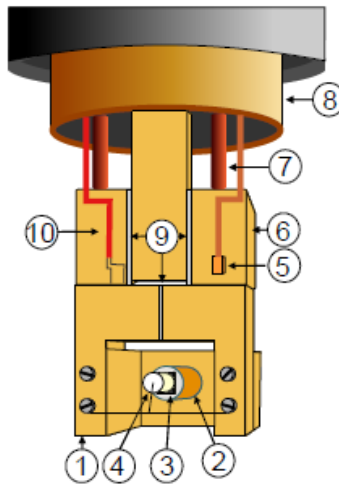


Abbildung 4-7 Darstellung des unteren Endes des Kryostaten mit transferierbarem Probenhalter. 1) Transferierbarer Teil des Probenhalters. 2) Abgeschrägter Probenpin. 3) Spaltbare Probe. 4) Keramikstäbchen zum spalten mit befestigtem Auffangdraht. 5) Silizium-Diode. 6) Fixierter Teil des Probenhalters. 7) Kontaktdrähte. 8) Thermische Abschirmung. 9) Saphirplatten. 10) Thermoelementdrähte (wurden in vorliegender Arbeit nicht verwendet). Nach [35]

Der transferierbare Teil des Probenhalters, auf dem die zu untersuchenden Proben befestigt sind ist so wie er in vorliegender Arbeit für die Messungen an Bi2212 verwendet wurde in Abbildung 4-8 dargestellt. Zur Vermeidung von magnetischen Feldern, welche die Trajektorien der Elektronen beeinflussen würden, bestehen sämtliche Teile des Probenhalters aus nicht-magnetischen Materialien wie Kupfer, Aluminium, Titan oder Tantal. In den transferierbaren Teil des Probenhalters ist ein Gewinde eingearbeitet, in das der Probenpin geschraubt werden kann, auf dem die eigentliche Probe befestigt ist (Abschnitt 5.1). Das Keramikstäbchen, welches zum Spalten der Probe dient, wird zudem durch einen Draht mit dem Probenhalter verbunden um zu verhindern, dass dieses nach dem Spalten unkontrolliert in die Kammer fällt.

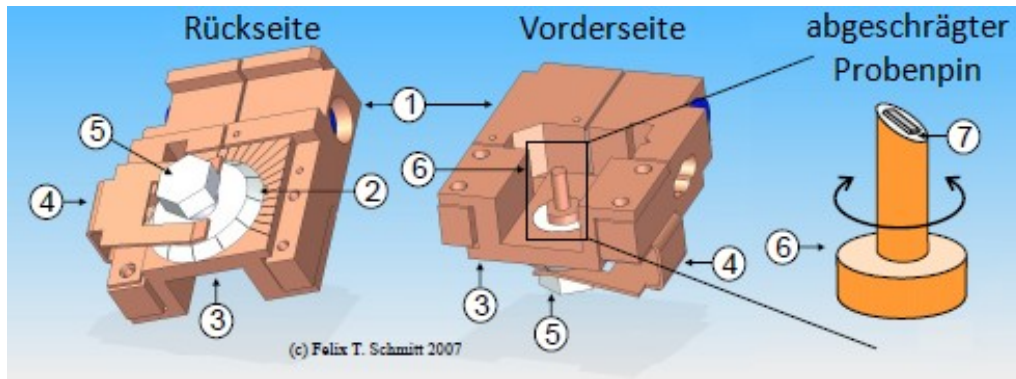


Abbildung 4-8 1) Transferierbarer Teil des Probenhalters. 2) Aluminiumschraube für azimutale Probenrotation. 3) Winkelskala 4) Haltefedern. 5) Sechskant-Schraubkopf zum Einstellen der Rotation. 6) Probenpin. 7) Probe. Nach [35]

Um mit Photonenenergien der Abfragepulse von 6 eV die Fermifläche von Bi2212 zu erreichen, sind Emissionswinkel von $> 45^\circ$ erforderlich. Da eine polare Drehung des Probenhalters um diesen Betrag zur Folge hätte, dass sich die Seitenteile des Probenhalters zwischen Probe und Spektrometer befänden und dies eine ungestörte Trajektorie der Photoelektronen verhindern würde, ist der Probenpin um 45° abgeschrägt, wodurch auch ohne polare Drehung des Manipulators der nötige Emissionswinkel erreicht wird. Um den Zugang zu größeren Bereichen der Brillouin-Zone zu erleichtern, befindet sich zusätzlich das eingearbeitete Gewinde in einem drehbaren Einlass, mit dessen Hilfe der Pin und somit die Probe azimutal rotiert werden kann. Dies geschieht mit Hilfe eines Sechskant-Schraubkopfes welcher kompatibel mit dem im oberen Kammerteil angebrachten Schraubenzieher ist, so dass die azimutale Drehung in-situ vorgenommen werden kann.

4.2.1 Das konventionelle Flugzeitspektrometer TOF

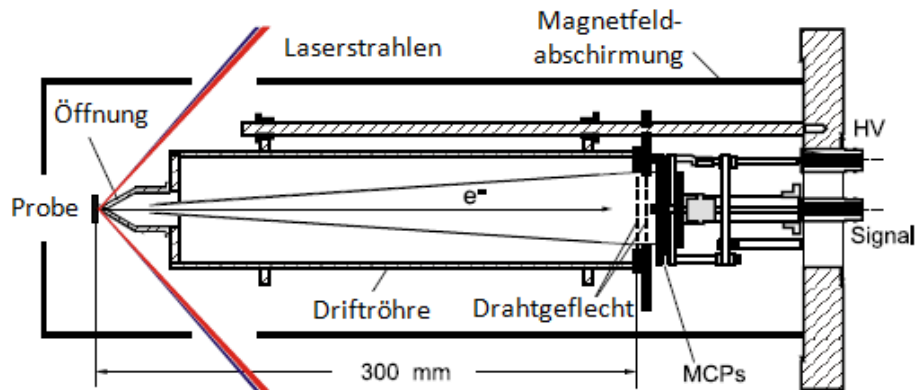


Abbildung 4-9 Das konventionelle Flugzeitspektrometer (TOF). Nach [91]

Abbildung 4-9 zeigt eines der beiden Flugzeitspektrometer, welche an der unteren Kammerebene installiert sind. Das konventionelle Flugzeitspektrometer (TOF) misst die Zeit, welche ein Elektron braucht, um eine Driftröhre von $L = 300$ mm Länge zu durchfliegen, wodurch sich die kinetische Energie des (nichtrelativistischen) Elektrons mit folgender Formel bestimmen lässt:

$$(4.3) \quad E_{kin} = \frac{1}{2} m_e v^2 = \frac{m_e L^2}{2t^2}$$

Mit der Elektronenmasse m_e . Da sich die Austrittsarbeiten des Spektrometers und der Probe in der Regel voneinander unterscheiden und sich diese in elektrischem Kontakt zueinander befinden, stellt sich ein Kontaktpotential ein, welches von den Photoelektronen überwunden werden muss. Um einen möglichst feldfreien Raum zwischen Spektrometeröffnung und Probe sicherzustellen, wird daher eine BIAS-Spannung angelegt, um die unterschiedlichen Austrittsarbeiten anzugleichen. Für die zu überwindende Potentialbarriere gilt somit (Abbildung 4-10):

$$(4.4) \quad eU = \phi_{Probe} - \phi_{spec.} + eU_{Bias}$$

Die Photoelektronen werden mit Hilfe von zwei Mikrokanalplatten (MCP's) mit je 40 mm Durchmesser detektiert. Diese Konfiguration erlaubt einen maximalen Akzeptanzwinkel der einfallenden Elektronen von $\pm 3,8^\circ$. Um eine homogene Austrittsarbeit des Spektrometers zu erreichen ($\phi_{spec.} \sim 4,3$ eV), sind alle Teile mit Graphit beschichtet. Weiterhin befindet sich um das Spektrometer eine μ -Metall Abschirmung welche das Eindringen von externen Magnetfeldlinien verhindern soll. Die Energie- und Impulsauflösung, welche mit dem TOF erreicht werden kann, hängt stark von der kinetischen Energie der Elektronen ab und ergibt sich als Beispiel für Elektronen mit $E_{kin} = 2$ eV zu $\Delta E_{kin} \approx 20$ meV und $\Delta k_1 \approx 0,1$ mÅ⁻¹ [92]. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass die tatsächlich im Experiment erreichte Auflösung neben dem Spektrometer noch durch die spektrale Breite des Abfragepulses bestimmt wird.

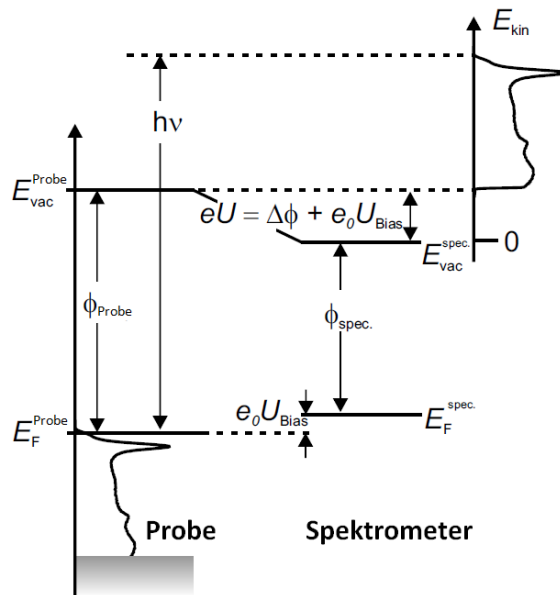


Abbildung 4-10 Potentialverlauf zwischen Probe und Spektrometer. Aufgrund von unterschiedlichen Austrittsarbeiten stellt sich durch elektrischen Kontakt ein Kontaktpotential ein, welches von den Photoelektronen überwunden werden muss. Durch das Anlegen eines Bias, können diese Unterschiede kompensiert werden um so einen feldfreien Raum zwischen Probe und Spektrometeröffnung herzustellen. Nach [85]

4.2.2 Das positionssensitive Flugzeitspektrometer pTOF

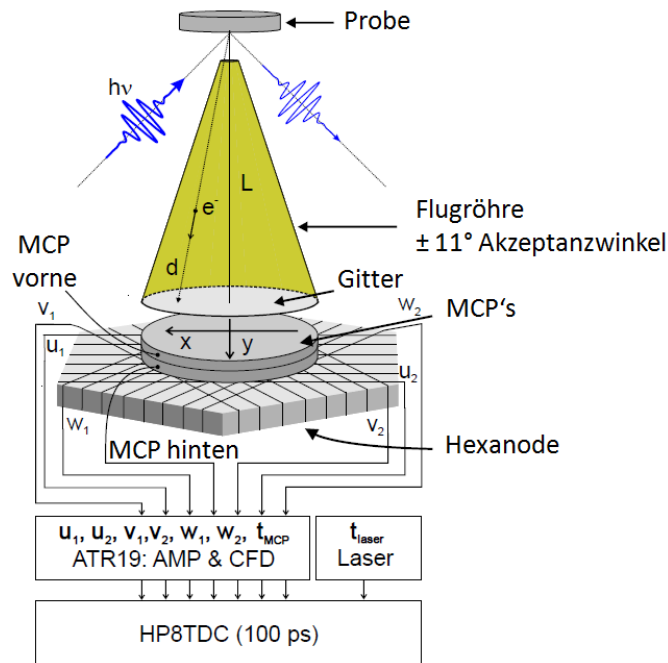


Abbildung 4-11 Aufbau des positionssensitiven Flugzeitspektrometers pTOF. Die 230 mm lange Flugröhre in Kombination mit der Hexanode von 80 mm Durchmessern erlaubt einen Akzeptanzwinkel von $\pm 11^\circ$. Die 6 Signale der aus drei Verzögerungsstrecken bestehenden Anode (Hexanode) werden zusammen mit einem MCP Signal sowie einem Laser Startsignal diskriminiert und von einem Zeit/Digital-Wandler mit einer Genauigkeit von 100 ps aufgezeichnet [93].

Das zweite an der UHV-Kammer installierte Spektrometer ist ein in Abbildung 4-11 dargestelltes, positionssensitives Flugzeitspektrometer (pTOF), mit dessen Hilfe der größte Teil der in vorliegender Arbeit präsentierten Daten aufgenommen worden ist. Im Gegensatz zu dem in (4.2.1) beschriebenen konventionellen TOF bietet das pTOF die Möglichkeit neben der Energie eines Photoelektrons zusätzlich auch den 2-dimensionalen Impuls der detektierten Elektronen anhand zwei voneinander unabhängig, in der Ebene der Probenoberfläche verlaufenden Richtungen p_x und p_y zu bestimmen [93]. Dies geschieht mit Hilfe einer aus 3 Verzögerungsstrecken (Drahtumwicklungen der Anode welche jeweils um 60° zueinander verdreht sind) bestehenden, kommerziell verfügbaren Anode der Firma RoentDek (RoentDek Hex80 Hexanode), welche sich hinter einem MCP-Paar befindet. Trifft ein Photoelektron

nach durchfliegen Flugröhre des pTOF mit der Länge $L = 230$ mm auf den vorderen Teil der MCP's, so verursacht dies eine Kettenreaktion wodurch am hinteren Ende der MCP's eine Ladungswolke bestehend aus etwa $10^6 - 10^7$ Elektronen entsteht. Bei Auftreffen der Ladungswolke auf die Hexanode werden Strompulse erzeugt, welche sich in allen drei Verzögerungsstrecken zu beiden Seiten hin ausbreiten und an den jeweiligen Enden registriert werden. Mit Hilfe der Ankunftszeiten der Impulse sowie dem zeitlichen Startsignal, welches beim Auftreffen des Elektrons auf die MCP's registriert wurde, kann anschließend die Position des eingetroffenen Elektrons rekonstruiert werden. Mit der so ermittelten, zwei dimensionalen Einschlagposition (x, y) sowie der Flugzeit t , können die kinetische Energie und die Impulskomponenten des reziproken Raums k_x und k_y mit folgender Formel berechnet werden:

$$(4.5) \quad \begin{aligned} E_{kin} &= \frac{m_e d^2}{2t^2} = \frac{m_e (x^2 + y^2 + L^2)}{2t^2} \\ \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix} &= \frac{m_e}{\hbar t} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} \end{aligned}$$

Wie auch beim konventionellen TOF hängt die Energie und Impulsauflösung von der kinetischen Energie der Elektronen sowie von der zeitlichen Auflösung der Messelektronik ab. Für Elektronen mit $E_{kin} = 2$ eV ergeben theoretische Auflösungen von $\Delta E_{kin} < 5$ meV und $\Delta k < 0,01 \text{ \AA}^{-1}$. Ebenfalls ist das pTOF in einen Schild aus μ -Metall eingefasst um magnetische Felder am Ort der Messung zu vermeiden.

Wie oben beschrieben hat jedes registriertes Photoelektron die Speicherung von 8 Zeitsignalen zur Folge, aus denen anschließend die Impulse und kinetischen Energien der Elektronen berechnet werden können. Aufgrund der Tatsache, dass die Verwendung von 3 Verzögerungslinien zur Bestimmung einer lediglich zweidimensionalen Position Redundanz zur Folge hat, können die Position und die Energie eines Elektrons selbst dann rekonstruiert werden, wenn nicht alle Zeitsignale eines Ereignisses vorhanden sind, was gelegentlich zum Beispiel aufgrund nicht optimaler Diskriminatoreinstellungen oder Randeffekte der Hexanode auftreten kann. Zusätzlich bietet das pTOF die Möglichkeit bei Auftreffen eines Laserpulses bis zu drei Ereignisse zu detektieren. Hierbei kann es vorkommen, dass einzelne Strompulse des zuletzt eingeschlagenen Elektrons noch vor denen des ersten Elektrons die Enden der

Verzögerungsstrecken erreichen und dort detektiert werden. Aufgrund dieser Tatsachen und wegen der großen Datenmengen, die bei einer typischen Zählrate von 100 kHz während eines Experimentes gesammelt werden, ist die nachträgliche Rekonstruktion von Mehrfachereignissen und fehlenden Zeitsignalen extrem rechenaufwendig und kann nicht während der Messung durchgeführt werden. Für eine Echtzeitdarstellung der aufgenommenen Daten werden daher nur Einzelereignisse mit vollständig vorhandenen Sets aus Zeitsignalen verwenden. Durch die nachträgliche Rekonstruktion der so vernachlässigten Ereignisse, kann die Anzahl der registrierten Photoelektronen um typischerweise ca. 30-40 % erhöht werden.

4.3 Aufbau eines neuen Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie

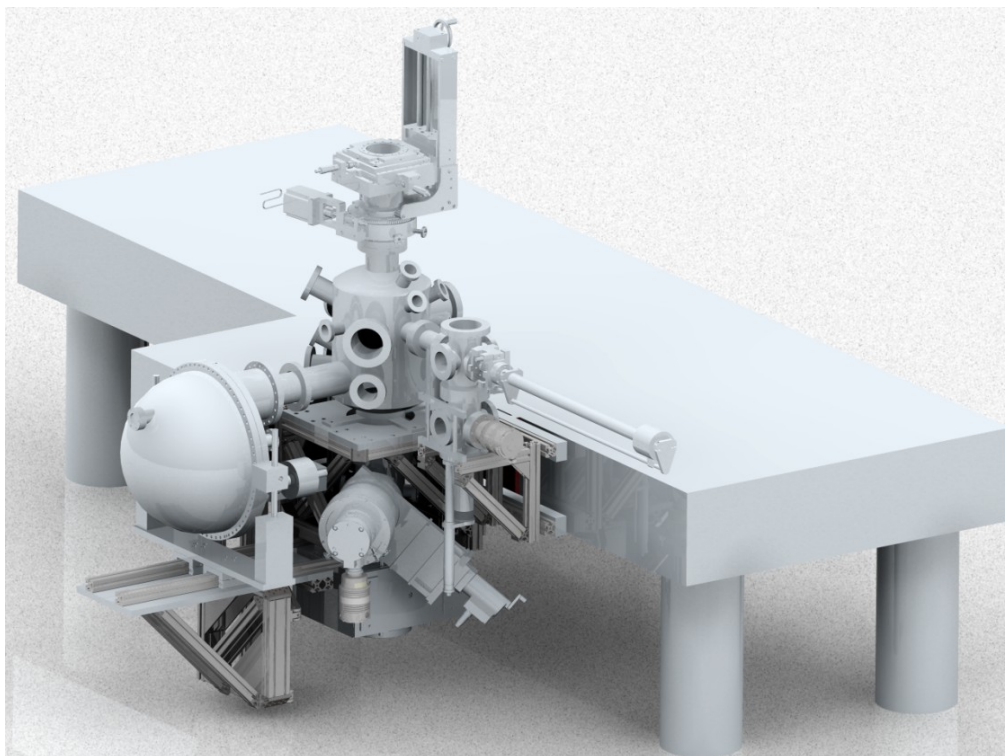


Abbildung 4-12 Gerenderte CAD-Zeichnung des gesamten Aufbaus des im Zuge dieser Arbeit neu aufgebauten Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie (ohne Kryostat und Goniometer).

Ein großer Teil der vorliegenden Arbeit bestand in dem Entwurf und Aufbau eines von Grund auf neuen Experimentes zur Photoemissionsspektroskopie, welches vor allem für die Untersuchung von spaltbaren Proben bei niedrigen Temperaturen konzipiert worden ist. Um eventuelle Missverständnisse auszuschließen, sei hier erwähnt, dass der im Folgenden beschriebene Aufbau als eigenständiger Teil der vorliegenden Arbeit zu betrachten ist und nicht zur Messung der in Kapitel 5 diskutierten Daten verwendet wurde.

Abbildung 4-12 zeigt eine Computergrafik des neuen Experimentes, so wie es im Laufe dieser Doktorarbeit entstanden ist. Neben der Konstruktion und Planung der eigentlichen UHV-Kammer und den damit verbundenen, notwendigen Komponenten wie etwa das Proben-Transfersystem oder die Ankopplungsvorrichtung des hemisphärischen Analysators (Phoibos 150, Specs) bestand die größte Herausforderung in der Entwicklung eines 6-Achsen-Manipulators welcher es ermöglichen sollte, die Probe bei niedrigen Temperaturen in jeweils 3 unabhängigen Translations- und Rotationsrichtungen bewegen.

Folgendes Kapitel beschreibt alle verwendeten und entworfenen Komponenten des neuen Experiments. Technische Zeichnungen zu den jeweiligen Bauteilen sind in Anhang A zu finden. Zudem wird anhand erster erfolgreicher Testmessungen die Funktionsweise demonstriert, welche außerdem zur Charakterisierung des Aufbaus verwendet werden.

4.3.1 Ultrahochvakuumkammer

Abbildung 4-13 zeigt eine Darstellung der UHV-Kammer, welche nach eigenen Spezifikationen von der Firma VG Scienta gefertigt worden ist. In vertikaler Richtung existieren zwei Hauptebenen, auf die ein Großteil der angebrachten Flansche ausgerichtet sind. Die obere Transferebene dient zum Einschleusen der Proben und befindet sich folglich auf Höhe des Transfersystems (4.3.3). Sie dient in erster Linie zum Vorbereiten sowie Spalten der Proben, was mit Hilfe eines per Faltenbalg in die Kammer linear einfühbaren Metallstabs durchgeführt wird. Anschließend können die Proben auf die untere Messebene bewegt werden, wo sich Öffnungen für die Lasereinkopplung und die Ankopplung an den Analysator Phoibos 150 der Firma Specs befinden, welche in einem Winkel von 45° zueinander orientiert sind.

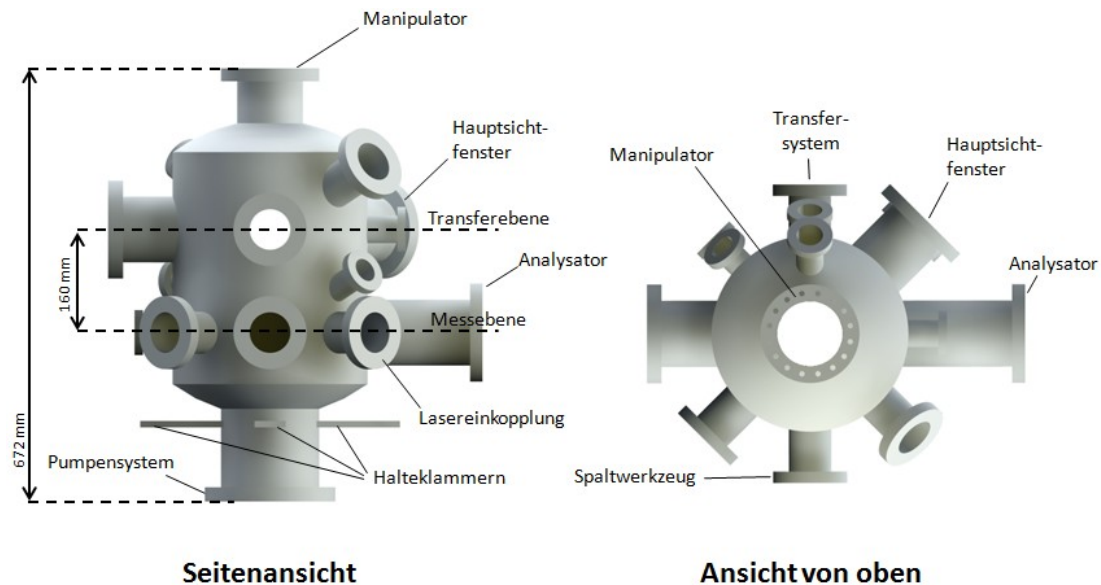


Abbildung 4-13 Darstellung der μ -Metall Kammer. Die wichtigsten Flansche sind gemäß ihrer Verwendung gekennzeichnet.

Um das Auftreten von Magnetfeldern innerhalb der UHV-Kammer zu vermeiden, wurde diese aus μ -Metall gefertigt, was aufgrund seiner hohen magnetischen Permeabilität zur Folge hat, dass sich der magnetische Fluss umgebender Felder innerhalb des Materials konzentriert und somit am Eindringen in die Kammer gehindert wird. Da jegliche Unterbrechung einer durchgehenden Materialwand unweigerlich eine Verschlechterung des Abschirmverhaltens zur Folge hat, sollte die Anzahl dieser möglichst gering gehalten werden. Da es sich jedoch nicht vermeiden lässt, die UHV-Kammer mit Öffnungen in Form von Flanschrohren zu versehen, gilt zur Minimierung des dadurch leichter eindringenden Magnetfeldes die Faustregel, dass die Länge des an einer Öffnung angebrachten Rohres mindestens gleich der des zugehörigen Flanschdurchmessers gewählt werden sollte. Nichtsdestotrotz sollte auf Flansche mit großem Durchmesser ($\geq \text{DN100CF}$) nach Möglichkeit verzichtet werden.

Bei vorliegendem Kammerdesign befindet sich die größte Öffnung in vertikaler Orientierung unterhalb der Kammer und dient als Ankopplung an das Pumpensystem. Da das effektive Saugvermögen einer Pumpe von der dritten Potenz des Durchmessers eines an den Ansaugstutzen angebrachten Rohres abhängig ist, wurde hier zu Gunsten des bestmöglichen Vakuums innerhalb der Kammer trotz des ungünstigen Einflusses auf die magnetische Abschirmung eine Flanschgröße von DN150CF gewählt. Das Pumpensystem besteht aus einer

Ionengetterpumpe der Firma Vacom (300L-CV-8D) mit integrierter Titansublimationspumpe sowie eine Turbomolekularpumpe der Firma Oerlikon (TURBOVAC 600C), deren zweistufiges Vorvakuum durch eine Kombination aus einer weiteren Turbomolekularpumpe (TURBOVAC SL80) sowie einer 4-stufigen Membranpumpe der Firma Vacuubrand (MV 10 Vario-B) erzeugt wird. Durch Kombination dieser Pumpen kann innerhalb der Kammer ein Druck von $< 10^{-10}$ mbar erzeugt werden.

Weiterhin besitzt die μ -Metall Kammer vier Rohröffnungen der Größe DN100CF. Ein Analysatorflansch zur Ankopplung des hemisphärischen Analysators an der Messebene (Abschnitt 4.3.4), ein Flansch zur Anbringung des Manipulators in vertikaler Richtung am oberen Ende der Kammer, ein Hauptsichtfenster auf der Transferebene sowie eine Öffnung zur späteren, optionalen Installation einer LEED-Vorrichtung. Während systembedingt die zwei erstgenannten Flansche auf eine Größe von DN100CF festgelegt sind und LEED Optiken typischerweise ebenfalls in dieser Größe verwendet werden, wurde das Sichtfenster in dieser Größe gewählt, da sichergestellt werden soll, dass hierdurch beide Ebenen gut einsehbar sind. Weiterhin existieren an der Kammer 7 DN63CF und 9 DN40CF Flanschöffnungen welche für Anwendungen wie die Ankopplung an das Transfersystem, Laser Ein- und Auskopplung, Druckmessung sowie für optionale spätere Verwendungen und weitere Sichtfenster vorgesehen sind. Eine detaillierte Beschreibung aller Flansche ist in Anhang A1 zu finden. Die nach Aufbau innerhalb der Kammer gemessene, maximale Magnetfeldstärke beträgt $1,9 \pm 0,1 \mu\text{T}$, während diese außerhalb der Kammer bis zu $100 \mu\text{T}$ beträgt. Somit konnte durch die hier beschriebenen μ -Metall Kammer eine Abschwächung des Magnetfeldes um $\sim 98 \%$ erzielt werden.

4.3.2 6-Achsen Manipulations- und Kühlsystem

Die größte Herausforderung im Zuge des Aufbaus des neuen Experimentes bestand in der Konstruktion eines 6-Achsen Manipulationssystems, mit dessen Hilfe die Probe bei tiefen Temperaturen in alle 6 voneinander unabhängigen Freiheitsgrade bewegt werden kann (3 Translation + 3 Rotation), wobei sich alle drei Achsen der Rotation notwendigerweise in einem Punkt, dem sog. Pivotpunkt, schneiden müssen. Ausgangspunkt der Konstruktion waren ein kommerziell verfügbarer Manipulator (MB2010-1/2), sowie eine differenziell gepumpte Rotationsdurchführung (DPRFS60-1/2) der Firma McAllister, mit dessen Hilfe die drei Translationsrichtungen (x, y, z) und die polare Drehrichtung (θ) realisiert wurden. Die

zusätzlich benötigten Rotationsrichtungen (μ und σ) wurden mittels eines eigens konstruierten Goniometers realisiert, welches zusammen mit einem kommerziellen Helium Kryostaten der Firma Cryovac (Konti Kryostat UHV) an dem Manipulator befestigt ist und über diesen in die Kammer geführt wird.

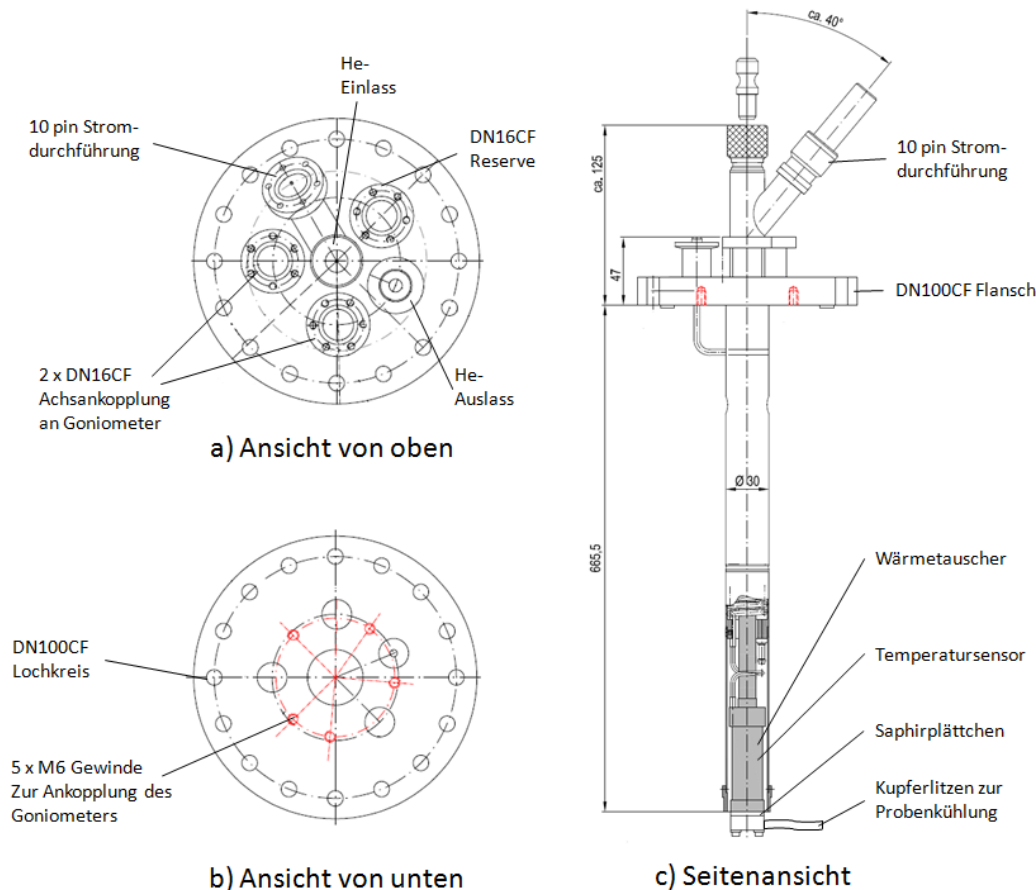


Abbildung 4-14 Darstellung des Heliumkryostaten (nicht maßstabsgetreu). a) Ansicht von oben. Neben dem Helium Ein- und Auslass existieren 3 weitere DN16CF Öffnungen für die Achsankopplung des Goniometers und optionale spätere Anwendungen sowie eine 10-pin Stromdurchführung. b) Ansicht von unten. 5 M6 Gewinde im Flansch dienen zur Ankopplung und Halterung des Goniometeranbaus. c) Seitenansicht. Um die Kühlleistung des Kryostaten an die Probe zu leiten ist an dem Kaltkopf des Kryostaten ein Kupferblock mit einem Bündel aus Kupferdrähten angebracht, über welches die Wärme von der Probe abgeführt werden kann. Zur elektrischen Isolation der Probe ist der Kupferblock durch ein Saphirplättchen von dem Kaltkopf des Kryostaten getrennt. [Nach technischer Zeichnung, siehe Anhang]

Der nach Kundenspezifikationen angefertigte Heliumkryostat der Firma Cryovac, welcher über einen DN100CF Flansch an den oberen Flansch des McAllister Manipulators angebracht ist und zur Kühlung der Probe dient, ist in Abbildung 4-14 in verschiedenen Ansichten dargestellt. Neben einem Helium Ein- und Auslass verfügt der Verbindungsflansch über drei weitere DN16CF Öffnungen, von denen zwei zur Ankopplung der Achsen sowie zur Bedienung des Goniometers dienen und einer für spätere, optionale Anwendungen vorgesehen ist. Zusätzlich befindet sich an dem Kopfflansch des Kryostaten ein elektrischer 10-Pin-Stecker. Dieser dient zum Anlegen eines Heizstroms sowie zur 4-Punkt-Temperaturmessung mittels zweier Siliziumdioden, von denen eine direkt am Kaltkopf des Kryostaten und eine an der Spannzange des Goniometers (siehe unten), nahe am Ort der Probe, angebracht ist. In einem ersten Funktionstest des Kryostaten konnte bei einem Druck von $p < 10^{-7}$ mbar der Kaltkopf mittels Heliumkühlung in weniger als 10 Minuten auf eine Zieltemperatur von 4,3 K gekühlt werden.

Wie bereits erwähnt ist das Herzstück des neuen Aufbaus das Goniometer, welches für die Steuerung der beiden Raumwinkel μ und σ zuständig ist. Das Design basiert auf einem an der Beamline 7 der Advanced Light Source (ALS) an dem Lawrence Berkeley Lab verwendeten Goniometers, welches von Eli Rotenberg entworfen und für den hier beschriebenen Aufbau iterativ weiterentwickelt wurde. Abbildung 4-15 zeigt das Goniometer in finaler Form und stellt illustrativ die Realisierung der Rotationswinkel μ und σ dar. Beide Winkel lassen sich über die Rotation von vertikal verlaufenden Steuerungsachsen einstellen, welche über die am Heliumkryostaten angebrachten DN16CF Flansche aus der Kammer geführt werden und so von außerhalb des UHV mit Hilfe von Drehdurchführungen bedient werden können. Am unteren Ende der σ -Steuerungsachse ist eine Schneckenwelle befestigt, welche in ein zentrisch um die σ -Drehachse verlaufendes Zahnrad greift und so die Rotationsbewegung der σ -Steuerungsachse in eine Drehung um die σ -Drehachse übersetzt. Das 50-zählige Schneckenrad in Kombination mit der 4-gängigen Schneckenwelle führen zu einem Übersetzungsverhältnis von 1:12,5 wodurch beispielsweise eine Drehung um 360° der Steuerungsachse in eine Drehung von $28,8^\circ$ um die σ -Drehachse übersetzt wird. Die eigentliche Drehung der Probe geschieht durch die an der σ -Drehachse befestigten Schwingplatte, in welche wiederum die Aufnahme des Probenhalters (siehe weiter unten im Text) sowie die Vorrichtung für die Drehung um den Winkel μ eingefasst ist, welche ebenfalls mit Hilfe eines Schneckengewindes mit gleichem Übersetzungsverhältnis realisiert wird. Da die Schneckenwelle sowie das Schneckenrad der μ -Drehrichtung fest mit der

Schwingplatte verbunden sind folglich keine feste absolute Position haben, kann die Ankopplung an die σ -Steuerachse nicht über eine starre Verbindung erfolgen, sondern wird mit einem elastischen Faltenbalg hergestellt, welcher die Bewegung der Schwingplatte und des μ -Schneckengewindes kompensiert.

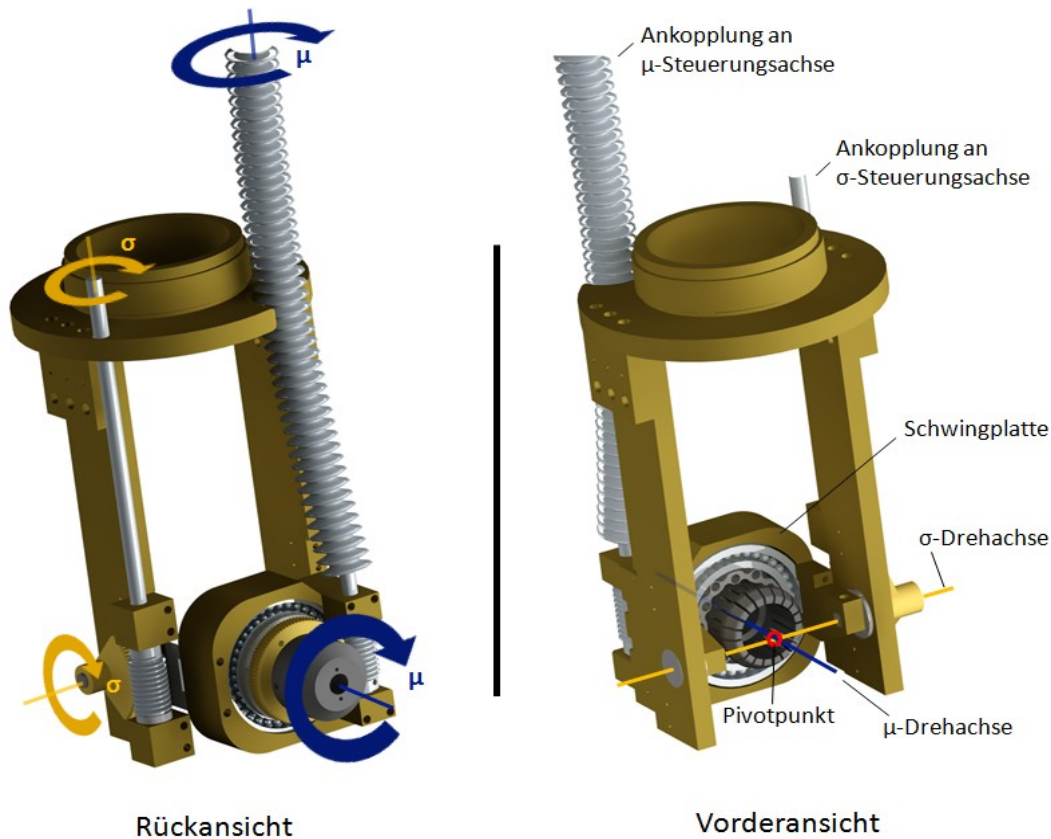


Abbildung 4-15 Goniometer zur Steuerung der Winkel μ und σ . Durch Rotation der Steuerachsen wird die Probe um die entsprechende Achse um den Pivotpunkt gedreht. Die Höhe des hier gezeigten Goniometers beträgt 129 mm.

Neben der unabhängigen Steuerung der beiden Rotationswinkel μ und σ um einen festen Pivotpunkt bestand eine weitere Anforderung in einer möglichst effizienten Kühlung der Probe. Zu diesem Zweck musste folglich eine thermisch möglichst gut leitende Verbindung zwischen dem Kaltkopf des Kryostaten und dem Proben aufnehmendem Teil des Goniometers hergestellt werden. Weiterhin sollte diese Verbindung bestmöglich von umliegenden Bauteilen thermisch isoliert sein um die Kühlung nicht relevanter umliegender Teile durch Konvektion zu vermeiden.

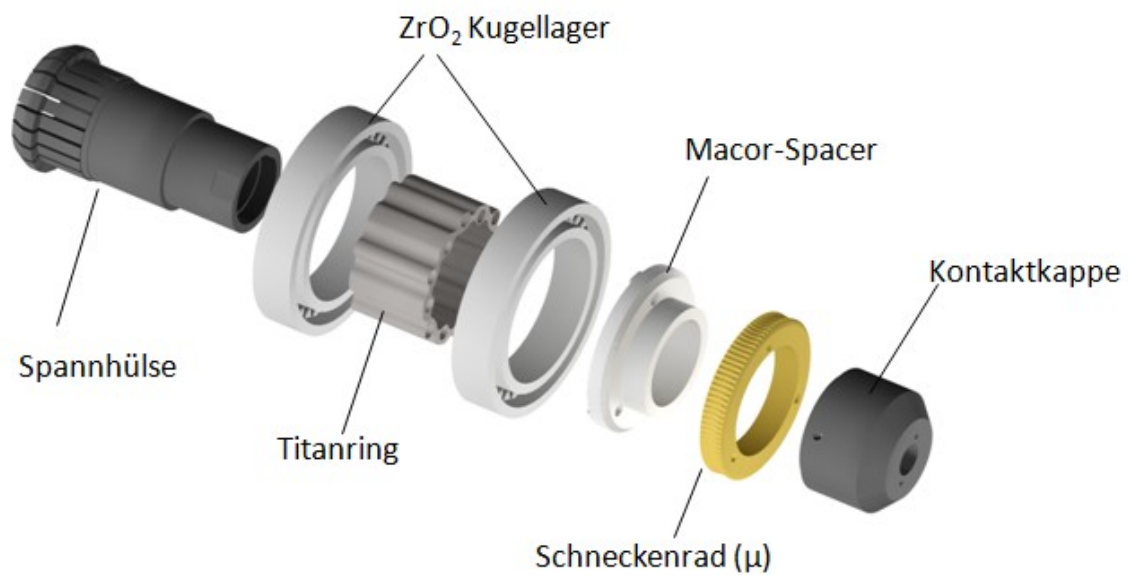


Abbildung 4-16 Explosionsansicht des Aufbau zur Probenaufnahme sowie thermischen Ankopplung an Kryostaten. Die vom Kaltkopf des Kryostaten kommenden Kupferlitzen werden durch die Kontaktkappe geführt und zwischen dieser und der Spannhülse eingeklemmt. Um Verluste durch Konvektion möglichst gering zu halten, befindet sich zwischen Spannhülse und den Kugellagern ein Titanring, welcher so konstruiert ist, dass möglichst wenig Auflagefläche mit den Lagern und der Spannhülse existiert. Um die Probe elektrisch zu isolieren, bestehen die Lager aus nichtleitendem Zirkoniumoxid.

Abbildung 4-16 zeigt das System zur Probenaufnahme in Explosionsansicht. Die vom Kryostaten kommenden Kupferlitzen zur thermischen Ankopplung werden durch die Kontaktkappe geführt und zwischen dieser und der Spannhülse fest eingeklemmt. Beide Bauteile bestehen zum Zwecke einer möglichst effizienten Wärmeleitung aus dem Sinterwerkstoff T-800. Zudem besitzt dieses Material die notwendige Elastizität um den Probenhalter saugend aufzunehmen und ihn mit ausreichender Stabilität zu halten (4.3.3). Um Wärmeeinträge durch die umliegenden Bauteile zu minimieren wird die Spannhülse von einem Titanring gehalten, welcher saugend von den Zirkoniumlagern umfasst wird und aufgrund der schlechten Wärmeleitfähigkeit von Titan zur thermischen Isolierung dient. Zudem besitzt dieser eine spezielle Form um die Auflagepunkte auf den Lagern sowie der Spannhülse möglichst gering zu halten, was den Wärmeübertrag durch die umliegenden Bauteile nochmals verringert (Anhang A). Das aus Bronze bestehende Zahnrad des μ -Schneckengetriebes, welches die Rotation der eben beschriebenen Bauteile steuert, sitzt

saugend auf einem Abstandshalter aus Macor (Macor-Spacer), welcher einerseits den Zweck hat einen Abstand zwischen Zahnrad und Kugellager herzustellen, um bei der Ankopplung des Schneckenrades an die Schneckenwelle eine Kollision dieser mit dem Lager zu verhindern, sowie andererseits als thermischer Isolator zwischen Spannhülse und Schneckenrad dient. Um bei einer Drehung des Schneckenrades die Mitnahme der Spannhülse und folglich auch des Probenhalters sicherzustellen und zudem den saugend in den Lagern sitzenden Titanring sowie die anderen Bauteile in ihrer axialen Position zu stabilisieren, existieren drei zusätzliche Titanschrauben (nicht eingezeichnet), welche parallel zur μ -Drehachse, durch die rohrartigen Randöffnungen des Titanringes, des Macor-Spacers und des Schneckenrades verlaufen und mit Gewinden innerhalb der Kontaktkappe verschraubt sind. Da die Köpfe dieser Schrauben aufgrund Ihres Durchmessers über den inneren Radius der Zirkoniumlager ragen, wird ein Herausrutschen der Bauteile zu beiden Seiten in axialer Richtung verhindert.

Zum Anlegen einer Bias-Spannung an die Probe war es zudem notwendig diese von den umliegenden Bauteilen des Goniometers, des Kryostaten sowie der UHV Kammer selbst elektrisch zu isolieren. Zu diesem Zweck wurden für die Materialien der Kugellager und den Macor-Spacer, welche die Verbindung zwischen Probenaufnahme mit den restlichen Komponenten herstellen, nicht leitende Materialien verwendet. Um einen Stromfluss über die Kupferlitzen zur thermischen Ankopplung an den Kaltkopf des Kryostaten zu verhindern, ist an diesem die elektrische Leitung durch ein zwischen Kaltkopf und Kupferlitzen angebrachtes Saphirplättchen unterbrochen (Abbildung 4-14).

Die Ankopplung des Goniometers an den Heliumkryostaten geschieht in erster Linie über ein Titanrohr, welches als Verbindung zwischen dem Kopfflansch des Kryostaten und dem Goniometer dient. Neben der exakten Länge des Titanrohres musste bei der Konstruktion der Ankopplung sichergestellt werden, dass sich die DN16CF Öffnungen am Kopfflansch des Kryostaten exakt mit den Antriebsachsen des Goniometers in Flucht befinden, um so eine Bedienung mit Hilfe von starren, vertikal verlaufenden geraden Achsen möglich zu machen. Weiterhin durften die Bauteile der Ankopplung in ihrem horizontalen Querschnitt einen Durchmesser von 7,5 cm an keiner Stelle überschreiten um auch bei maximaler Auslenkung des Manipulators in x-y-Richtung eine Kollision mit der Innenwand des Faltenbalges zu vermeiden.

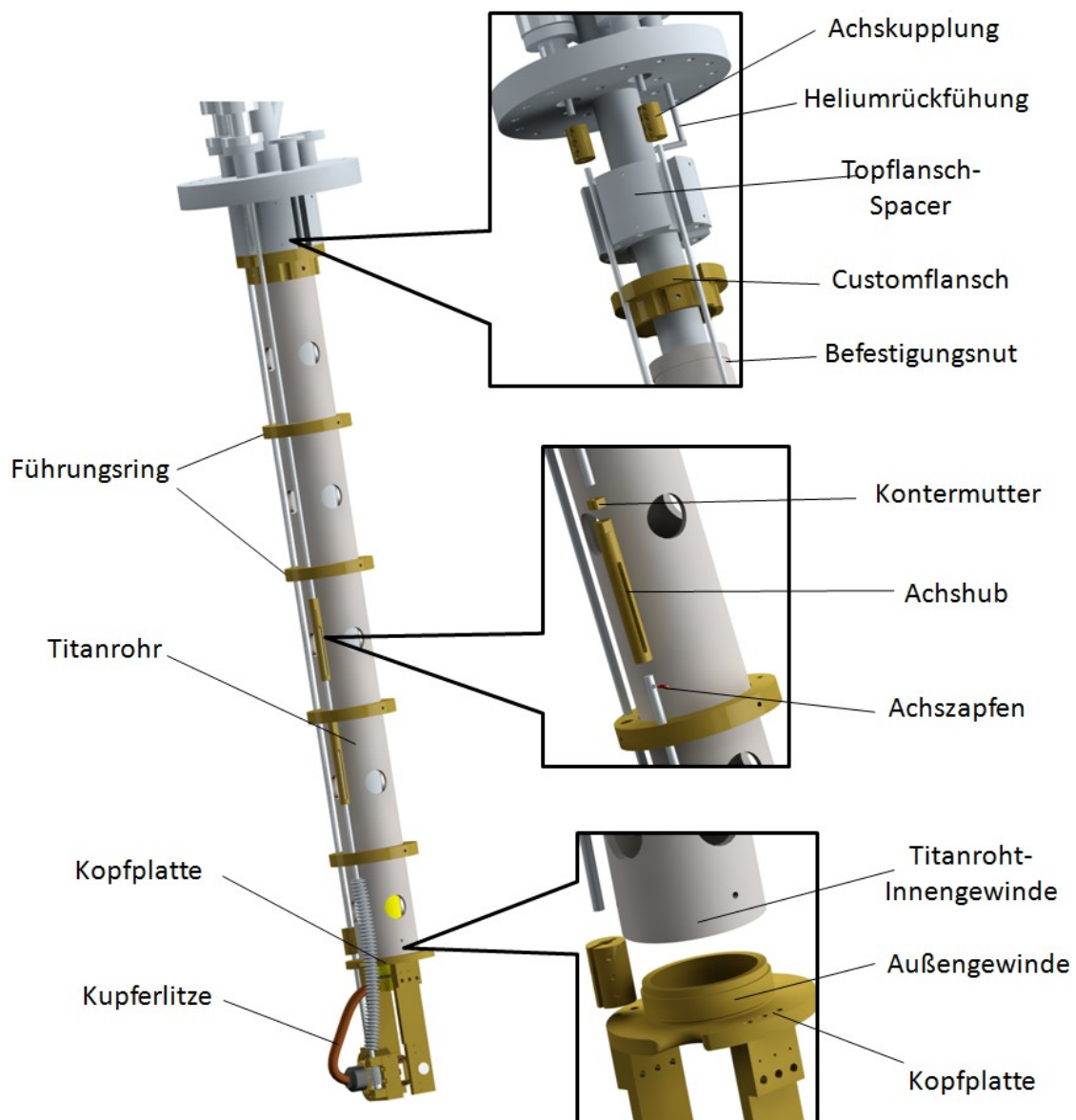


Abbildung 4-17 Darstellung der Ankopplung des Goniometers an den Heliumkryostaten. Detailvergrößerungen auf der rechten Seite in Explosionsdarstellung.

Zur Befestigung des Titanrohres an der Kopfplatte des Goniometers ist an dieser ein Außengewinde eingearbeitet, auf das sich die Unterseite des Titanrohres aufschrauben lässt und dort mit Hilfe von drei Madenschrauben fixiert werden kann. Die Verbindung des Titanrohres mit dem Kopfflansch des Kryostaten geschieht ohne Gewinde durch Einführen des Rohres in einen Kragen, welcher an dem sogenannten „Customflansch“ (Abbildung 4-17) angebracht ist. Durch drei horizontal durch den Customflansch verlaufende Schrauben,

welche in eine in das Titanrohr eingefräste Nut greifen, wird dieses fixiert und am Herausrutschen gehindert. Der Customflansch wird durch 5 vertikal verlaufende Schrauben an dem Kopfflansch des Kryostaten befestigt, welcher an den jeweiligen Stellen Gewinde aufweist. Zwischen dem Customflansch und dem Kopfflansch befindet sich der sogenannte Topflansch-Spacer, welcher eine Aussparung für die Heliumrückführung aufweist, was im Falle des Titanrohres zu einer verminderten Stabilität geführt hätte.

Die Ankopplung der zwei Goniometerachsen geschieht über senkrecht verlaufende Titanstangen, welche durch die DN16CF Öffnungen am Kopfflansch des Kryostaten aus dem Vakuum geführt werden und dort mit Hilfe von Drehdurchführungen gesteuert werden können. Um eine vom Goniometer bis zur Drehdurchführung durchgehende Verbindung herzustellen, werden die vom Goniometer weggeführten Achsstangen durch eigens konstruierten Kupplungen mit den Achsen der Drehdurchführungen verbunden.

Im Falle der μ -Steuerungsachse ist eine starre Verbindung aufgrund der nicht absoluten Position des zugehörigen Schneckengewindes nicht realisierbar. Aus diesem Grund wurde ein Faltenbalg aus nickelfreiem Edelstahl verwendet, welcher die Rotation der Schneckenwelle auf eine starre Achse überträgt, welche ebenfalls auf oben beschriebene Weise mit dem Kopfflansch des Kryostaten verbunden ist. Aufgrund der eingeschränkten Elastizität des verwendeten Faltenbalges, entsteht durch ein zusätzlicher Hub in vertikaler Richtung, welcher durch die Ankopplung aufgenommen werden muss. Dies geschieht mit Hilfe von kleinen Röhren (Achshub), welche an der oberen Seite mit einer Achsstange verschraubt und durch eine Kontermutter fixiert werden können. Von der unteren Seite verläuft die anzukoppelnde Achsstange in senkrechter Richtung frei innerhalb des Bauteils, wobei eine Rotation mit Hilfe eines Achszapfens, welcher horizontal durch ein dafür vorgesehenes Loch in die Achse gepresst wird und entlang einer vertikal in den Achshub eingearbeiteten Führungsnut verläuft, an die obere Achse übertragen wird.

4.3.3 Das Probenmagazin und Transfersystem

Das Probenmagazin, welches über einen DN100CF Flansch mit der UHV-Kammer verbunden ist, dient zur Deponierung von vorbereiteten Probenhaltern, welche von dort unter Vakuum in die UHV-Kammer transferiert und auf das Goniometer aufgesteckt werden können. Damit das Vakuum in der UHV-Kammer beim Bestücken des Magazins nicht zerstört wird, befindet sich zwischen beiden Komponenten ein UHV-Ventil mit dessen Hilfe

die UHV-Kammer vom Magazin manuell getrennt werden kann. Das Probenmagazin besteht prinzipiell aus zwei übereinander angebrachten DN100CF Doppelkreuzen welche mittels einer Turbomolekularpumpe evakuiert werden können, deren Vorvakuum durch eine vierstufige Membranpumpe (4.3.1) erzeugt wird. Innerhalb der Doppelkreuze befindet sich das Probenkarussell, welches zur eigentlichen Deponierung der Probenhalter dient. Abbildung 4-18 zeigt den Aufbau des Magazins sowie des innerhalb dessen verlaufenden Karussells. Es bietet Platz für insgesamt 8 Probenhalter, welche auf zwei Ebenen deponiert werden können, wobei das Karussell so konzipiert wurde, dass es jederzeit um weitere Ebenen erweitert werden kann. Durch Drehung sowie Heben und Senken des Karussells mit Hilfe einer unterhalb der Doppelkreuze angebrachten Kombination aus Dreh- und Lineardurchführung können die Probenhalter an die an einem Transferstab befestigte Probengabel übergeben werden und anschließend in die UHV-Kammer geschleust werden. Die Aufnahme der Probenhalter geschieht über zwei Nuten, welche am äußeren Rand der Probenhalter eingearbeitet und somit von in diese hineingreifenden Gabeln gehalten werden können. Um jederzeit eine eindeutige Orientierung der Probenhalter sicherzustellen und somit Fehlbedienungen auszuschließen, sind die Nuten von unterschiedlichen Breiten, um sie somit eindeutig den Haltegabeln am Karussell und der Probengabel am Transferstab zuzuweisen. Die goniometerseitige Aufnahme des Probenhalters geschieht über die in Abbildung 4-16 dargestellte Spannhülse, auf welche der Probenhalter aufgesteckt wird, wobei die am vorderen Ende der Spannhülse eingearbeiteten Lamellen die passende Flexibilität aufweisen, um einerseits das Aufstecken und Abziehen sowie andererseits das sichere Halten des Probenhalters zu gewährleisten.

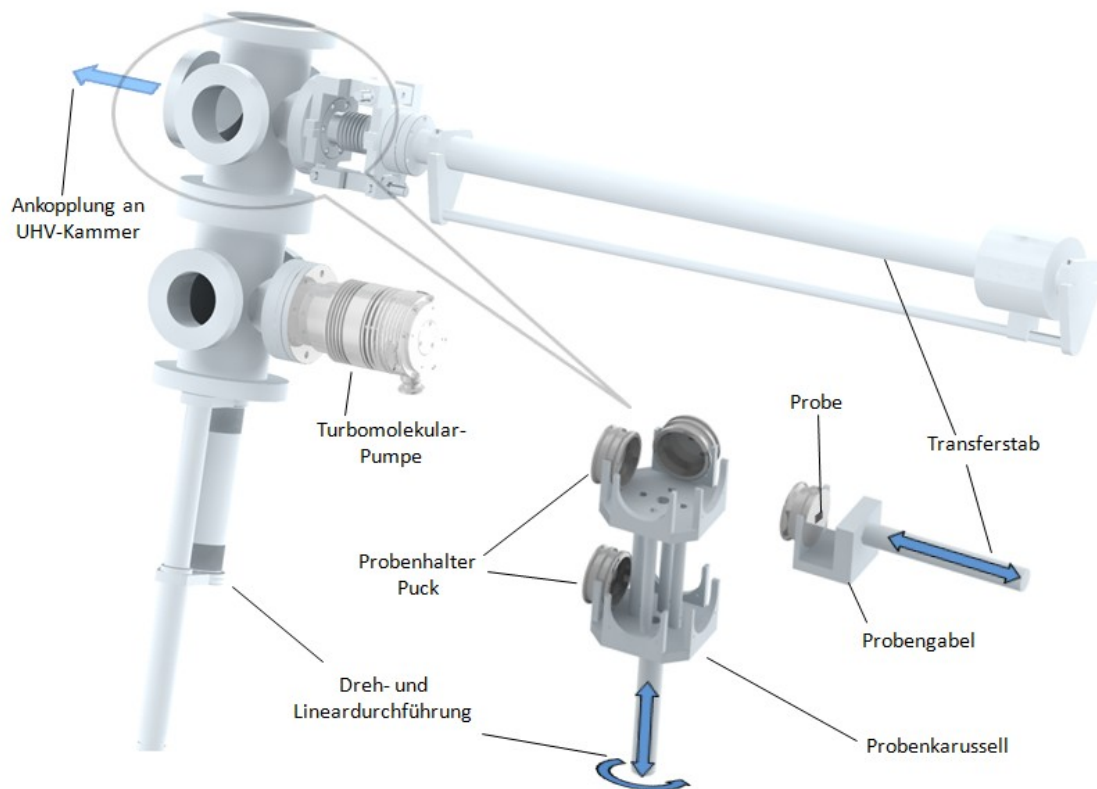


Abbildung 4-18 Darstellung des Probenmagazins und des innerhalb des DN100CF Doppelkreuzes verlaufenden Probenkarussells. Durch Heben und Senken sowie Drehung des Karussells, kann der Puck auf die Probengabel übergeben werden, welche an dem rein und raus bewegbaren Transferstab befestigt ist.

4.3.4 Der hemisphärische Analysator

Das zur Detektion von Photoelektronen verwendete Spektrometer ist ein hemisphärischer Analysator der Firma Specs (Phoibos 150), welcher über einen DN100CF Flansch mit der Kammer verbunden ist (Abbildung 4-21). Einfallende Photoelektronen durchfliegen, nach der Durchquerung eines elektronischen Linsensystems, eine aus zwei konzentrischen Elektroden bestehende Halbkugel und werden im Anschluss daran durch eine Kombination aus einer Mikrokanalplatte und einem Phosphorschirm mit Hilfe eines 2D-Detektors (CCD-Kamera) nachgewiesen. Die so erzeugten zweidimensionalen Abbildungen enthalten Informationen über den Ort und die Energie der detektierten Elektronen, wie im Folgenden beschrieben wird.

Durch das Anlegen einer Spannung zwischen den Elektroden der Hemisphäre entsteht ein radiales elektrisches Feld was dazu führt, dass nur Elektronen mit definierter kinetischer Energie (Passenergie E_{pass}) die Hemisphäre auf einer perfekten Kreisbahn passieren können. Elektronen mit leicht von E_{pass} abweichenden kinetischen Energien werden folglich von dieser perfekten Kreisbahn abgelenkt und verlaufen stattdessen auf elliptischen Trajektorien welche an unterschiedlichen Stellen auf den bildgebenden Detektor auftreffen. Höher energetische Elektronen kommen der äußeren Hemisphäre näher, während niederenergetische Elektronen zur inneren Hemisphäre hin abgelenkt werden. Dadurch ergibt sich eine energiedispersive Achse der zweidimensionalen Abbildung anhand derer die Energien der detektierten Photoelektronen bestimmt werden können. Um Elektronen mit einer bestimmten Energie E_{kin} zu detektieren, müssen diese zunächst mit Hilfe des Linsensystems (Abbildung 4-22) auf die eingestellte Passenergie beschleunigt oder abgebremst werden. Da die Passenergie von der Potentialdifferenz zwischen äußerem und innerem Teil der Hemisphäre abhängt, wodurch ebenfalls beeinflusst wird, wie stark Elektronen mit leicht von der Passenergie abweichender kinetischer Energie von der zentralen Trajektorie abgelenkt werden, ist die Größe des auf den Detektor abgebildeten Energieintervalls ebenfalls von der Passenergie abhängig ($\sim \pm 10\%$ von E_{pass} um E_{kin}). Je kleiner die Passenergie, desto kleiner das betrachtete Energieintervall. Während sich folglich also die Energieauflösung bei niedriger Passenergie verbessert, reduziert man jedoch andererseits auch die Anzahl der detektierten Elektronen, was zu einer Verschlechterung des Signal-Rausch-Verhältnis führt und längere Messzeiten nötig machen kann. Die theoretische Auflösung des Analysators ΔE ist gegeben durch:

$$(4.6) \quad \Delta E = \frac{E_{\text{pass}}}{4} \left(\frac{S_1 + S_2}{r_0} + \alpha^2 \right)$$

Mit dem zentralen Radius der Hemisphäre r_0 (in vorliegendem Fall 150 mm), dem Ein- und Austrittsspalt S_1 und S_2 , sowie dem Akzeptanzwinkel α bei Eintreffen der Elektronen auf den Eingangsspalt. Die theoretische Auflösung des Analysators ist somit auch abhängig von den eingestellten Spaltgrößen und dem Akzeptanzwinkel α , welcher wiederum von dem gewählten Linsenmodus abhängig ist (siehe unten). Abbildung 4-19 gibt eine Übersicht über die verfügbaren Spaltgrößen des verwendeten Phoibos 150. Da die theoretische Auflösung des Spektrometers bei ~ 1 meV liegt, ist hier zu beachten, dass die tatsächlich im Experiment erreichte Auflösung maßgeblich durch die spektrale Breite des Abfragepulses bestimmt wird.

Eingang S_1		Ausgang S_2	
Spaltnummer	Spaltgröße	Spaltnummer	Spaltgröße
1	0.2 x 20 mm	A	0.25 x 20 mm
2	0.5 x 20 mm		
3	1 x 20 mm		
4	3 x 20 mm	B	Offen
5	7 x 20 mm		
6	dia. 1 mm	C	3 x 20 mm
7	dia. 3 mm		
8	dia. 7 mm		

Abbildung 4-19 Die verschiedenen Ein- und Ausgangsspalte des Phoibos 150. Nach [94]

Die Informationen welche auf der nicht-energiedispersiven Achse des 2D-Detektors dargestellt werden, können mit Hilfe des in Abbildung 4-22 dargestellten Linsensystems beeinflusst werden. Dieses besteht im Wesentlichen aus einer zylindrischen Flugröhre mit 10 darin angebrachten Elektroden T1-T10. Durch entsprechende Linsenmodi, welche sich anhand der zwischen den einzelnen Elektroden T1-T10 angelegten Spannungen unterscheiden, können die Trajektorien der Photoelektronen und somit die Abbildungseigenschaften eingestellt werden. Hierbei lassen sich beispielsweise, je nach Linsenmodi, räumliche Bereiche der Probenoberfläche direkt abbilden oder es können winkelaufgelöste Messungen, bei denen die Austrittswinkel der Photoelektronen selektiert werden, durchgeführt werden. Abbildung 4-20 gibt eine Übersicht über die bei dem Phoibos 150 verfügbaren Linsenmodi. Zwischen der zweiten und dritten Elektrode befindet sich zusätzlich eine Irisapertur, welche dazu verwendet werden kann, bei gegebener Spaltgröße sowie Linsenmodus die Orts- bzw. Winkelauflösung zu verbessern, in dem am Rand verlaufende Trajektorien und Elektronen auf undefinierten Bahnen abgeblockt werden.

Mode	Acceptance area	Acceptance angle	Typical Application
Spatially resolved <i>High Magnification</i> <i>Medium Magnification</i> <i>Low Magnification</i>	Entrance slit size divided by M independent of analyzer settings. Slit sizes 7×20, 3×20, 1×20, 0.5×20, 0.2×20, Ø7, 3 and 1 mm Magnification M = 10 Magnification M = 5 Magnification M = 2	With Iris aperture continuously adjustable from maximum to ±1° Up to ±9° Up to ±6° Up to ±3°	Small area XPS, UPS standard ARXPS and ARUPS
Transmission optimized <i>Large Area</i> <i>Medium Area</i> <i>Small Area</i>	Optimized for different spot sizes of the source. Typical spot size Ø 5 mm Ø 2 mm Ø 0.1 mm	Up to ±5° Up to ±7° Up to ±9°	Large Area XPS Monochromated XPS AES, ISS and synchrotron studies
Angular resolved <i>High Angular Dispersion</i> <i>Medium Angular Dispersion</i> <i>Low Angular Dispersion</i> <i>Wide Angle Mode</i>	Slightly decreasing with increasing retarding ratio and independent of slit sizes	Entrance slit size divided by D independent of analyzer settings. Slit sizes 7×20, 3×20, 1×20, 0.5×20, 0.2×20, Ø 7, 3 and 1 mm D = 3.2 mm/° (±3° acceptance) D = 2.2 mm/° (±4° acceptance) D = 1.2 mm/° (±7° acceptance) D = 0.5 mm/° (±13° acceptance)	Low kinetic energy applications. ARXPS / ARUPS with a 2D detection system (Angular Mapping)

Abbildung 4-20 Übersicht über die verschiedenen Linsenmodi des Phoibos 150. Nach [94]

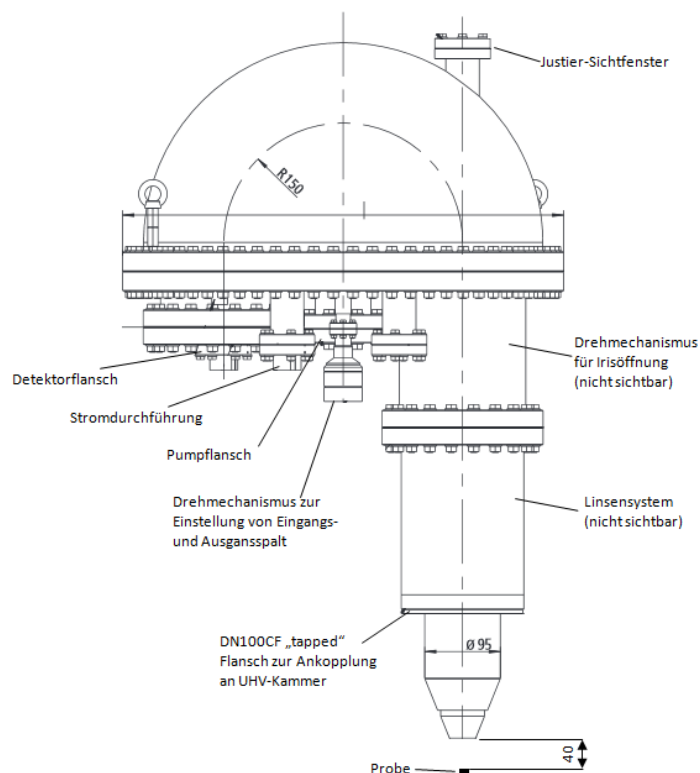


Abbildung 4-21 Schematische Darstellung des hemisphärischen Analysators SPECS Phoibos 150. Alle Angaben in mm. Nach [94]

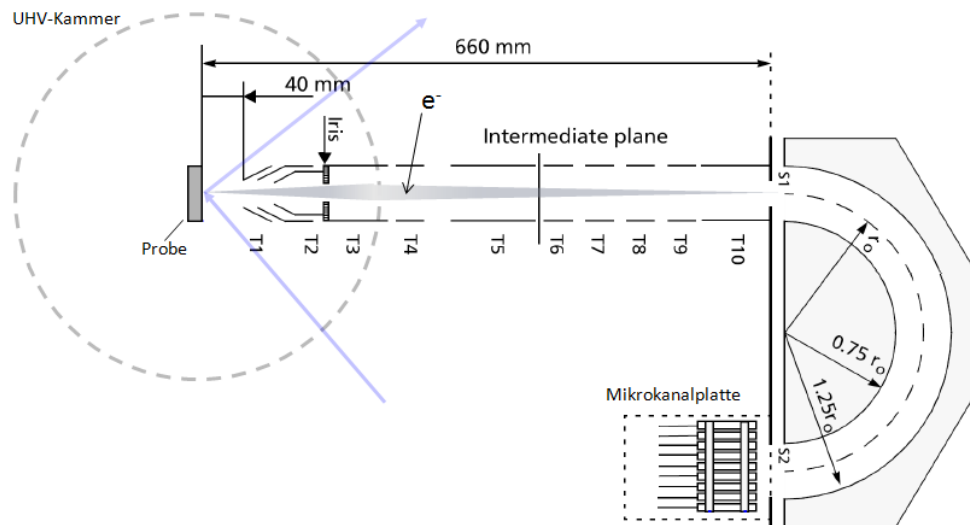


Abbildung 4-22 Darstellung des Linsensystems des hemisphärischen Analysators. Elektroden T1-T10. Eingangsspalt S1. Ausgangsspalt S2. Zentraler Radius der Hemisphäre r_0 . Nach [94]

Da die Trajektorien geladener Teilchen durch magnetische Felder, inklusive des Magnetfeldes der Erde, beeinflusst werden, ist es notwendig das durch den Analysator eingeschlossene Volumen magnetisch abzuschirmen. Dies wird, wie im Falle der UHV-Kammer (4.3.1), durch μ -Metall realisiert, welches in einer 1,5 mm dicken Schicht die Hemisphäre, das Linsensystem sowie den Detektor einschließt und alle externen magnetischen Feldstärken auf einen unkritischen Bereich abdämpft. Zur Herstellung einer adäquaten Ankopplung zwischen der μ -Metallabschirmung des Analysators der μ -Metall UHV-Kammer um zu verhindern, dass zwischen diesen Bauteilen Magnetfelder in das Volumen eindringen können, existiert eine flexible μ -Metallklammer in zylindrischer Form, welche, ähnlich eines Kragens, auf das Linsensystem des Analysators gesteckt wird. Beim Einführen des Linsensystems in den dafür vorgesehenen Kammerflansch wird diese Klammer von dem Flanschrohr an das äußere Linsensystem gepresst und sorgt somit für einen hinreichend guten Kontakt zwischen den μ -Metallabschirmungen von Kammer und Analysator und somit für eine über das gesamte relevante Volumen durchgehende Abschirmung.

4.3.5 Erste Inbetriebnahme

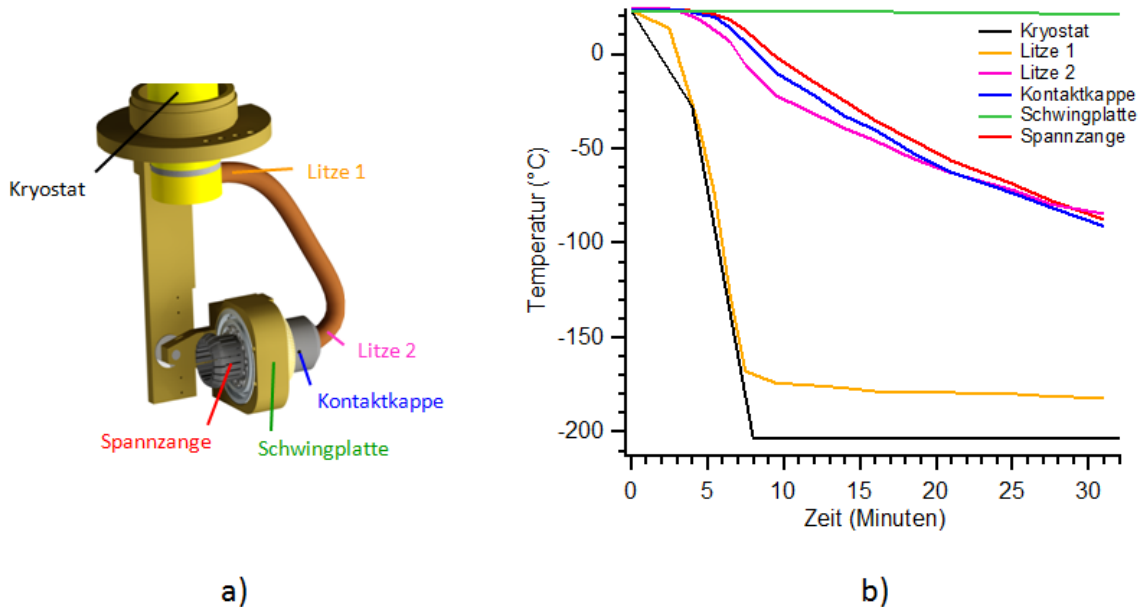


Abbildung 4-23 Test der Probenkühlung durch Temperaturmessung an verschiedenen Stellen bei mit flüssigem Stickstoff gekühltem Kryostaten. a) Stellen der Temperaturmessung. b) Temperaturverlauf

Um zunächst die Kühleigenschaften des Goniometers zu testen, wurden bei einem Druck von $p = \sim 10^{-8}$ mbar an verschiedenen Stellen über einen Zeitraum von ca. 30 Minuten hinweg Temperaturmessungen durchgeführt, während der Kryostat mit flüssigem Stickstoff (77 K) gekühlt wurde. Hierzu dienten zwei Silizium-Dioden, welche innerhalb des Kaltkopfes des Kryostaten und zwischen zwei Lamellen der Spannzange angebracht sind, sowie 4 Thermoelemente, von den zwei an den jeweiligen Enden der die Verbindung zwischen Goniometer und Kaltkopf herstellenden Kupferlitze sowie an der Kontaktkappe und der Schwingplatte befestigt sind (Abbildung 4-23 a). Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 4-23 b) dargestellt. Wie daraus ersichtlich dauert es nur wenige Minuten bis die Temperatur des Kryostaten-Kaltkopfes in den Bereich des flüssigen Stickstoffes abgefallen ist. Die Temperatur an dem Kryostaten-seitigen Ende der Kupferlitze fällt zunächst ähnlich schnell, bis sie nach Erreichen einer Temperatur von ~ -170 °C wesentlich langsamer zu fallen beginnt und nach 30 Minuten eine Temperatur von ~ -180 °C erreicht hat. Während die Temperatur der von der Kühlleitung durch den Titanring entkoppelten Schwingplatte nur um

einige wenige Grad fällt, verläuft die Temperatur an den drei übrigen Positionen (Litze 2, Kontaktkappe, Spannzange) in dem beobachteten Temperaturbereich ähnlich und beträgt nach 30 Minuten erst etwa $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$. Langzeittests bei späteren Testmessungen haben zudem gezeigt, dass die Spannzange bei maximaler Kühlung nach ca. 120 Minuten eine minimale Temperatur von $\sim -170\text{ }^{\circ}\text{C}$ erreicht.

Auffällig ist zunächst der stark unterschiedliche Verlauf an den Positionen Litze 1 und Litze 2, welche sich an den beiden Enden der Kupferlitze befinden. Da Verluste durch Konvektion aufgrund des bestehenden Vakuums sowie ein durch Temperaturstrahlung verursachter Wärmeeintrag in dem beobachteten Temperaturbereich dies nicht erklären können, deutet der Unterschied der Temperaturen auf einen zusätzlichen Wärmeeintrag durch Konvektion hin, welcher die Kühlung an den gemessenen Positionen stark verlangsamt und folglich nur über Schwingplatte erfolgen kann. Zwar sinkt die Temperatur der Schwingplatte nur um einige Grad, jedoch befindet sich diese in gutem thermischen Kontakt zu den restlichen Bauteilen des Goniometers und stellt somit ein effektiv großes Wärmereservoir da, welches eine verlangsamte Kühlung erklären würde.

Um weitere Evidenz für diese Vermutung zu erhalten wurde für eine weitere Messung die Kontaktkappe von dem restlichen Goniometer getrennt um so den Einfluss eines unbeabsichtigten Wärmereservoirs zu verhindern. Abbildung 4-24 zeigt den Temperaturverlauf als Ergebnis dieser Messung. Die Kühlung an den Positionen Litze 2 und Kontaktkappe verläuft nun wesentlich schneller und erreicht nach ca. 30 Minuten einen Wert von $\sim -170\text{ K}$ bzw. -150 K . Zudem erreicht auch die Temperatur der Litze 1 nun einen um 10 Grad niedrigeren Wert als mit angekoppeltem Goniometer. Der deutliche Unterschied bei an- und abgekoppelter Kontaktkappe legt nahe, dass in der Tat die Schwingplatte und somit alle weiteren Bauteile des Goniometers nicht in ausreichendem Maße thermisch von der Spannzange entkoppelt ist. Um die derzeit nur durch den Titanring realisierte thermische Isolierung der Spannzange zu optimieren, wurde eine neue, vollständig aus Macor bestehende Schwingplatte entworfen, welches eine wesentlich schlechtere Wärme demnächst installiert werden soll. Da Macor eine wesentlich schlechtere Wärmeleitfähigkeit als Bronze aufweist, soll so der Wärmeeintrag durch umliegende Bauteile verhindert werden.

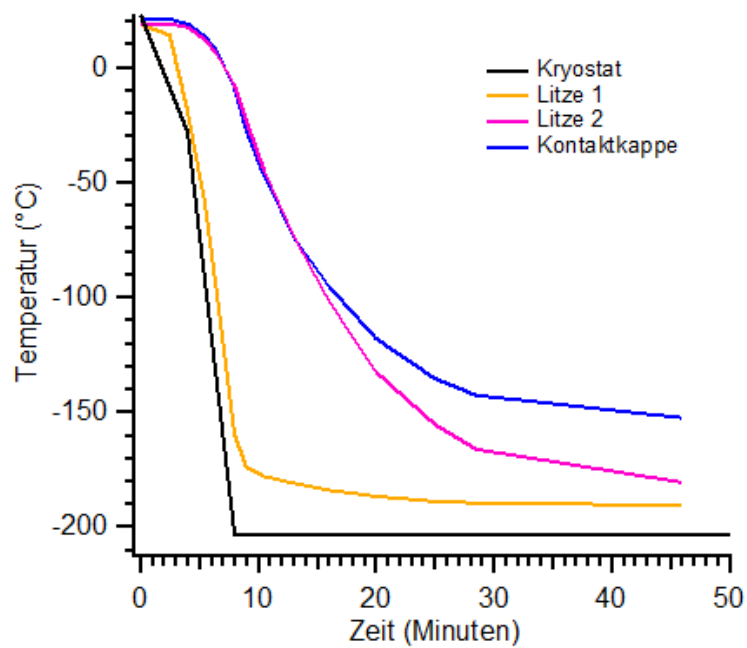


Abbildung 4-24 Temperaturverlauf bei vom Goniometer getrennter Kontaktkappe an den Positionen gemäß Abbildung 4-23 a).

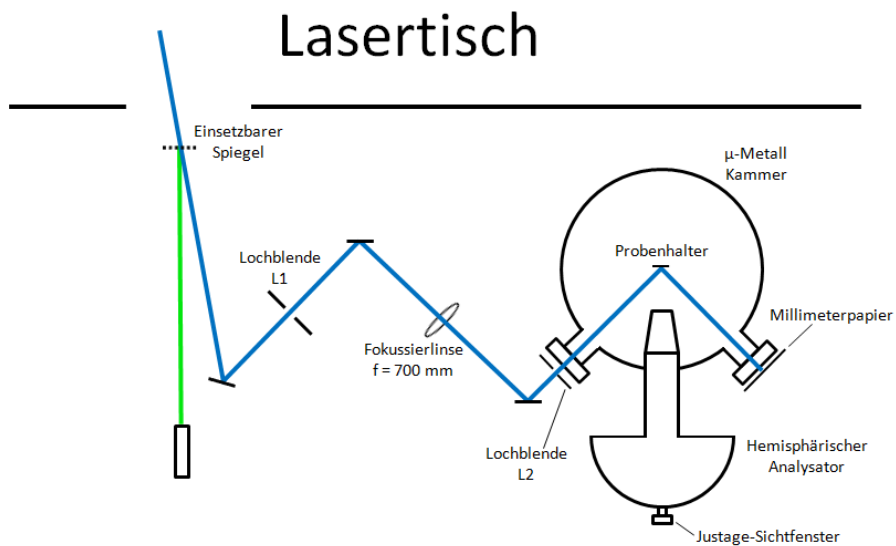


Abbildung 4-25 Strahlverlauf und zur Justage und Kalibrierung verwendete Komponenten.

Weitere, wenn auch weniger deutliche, Beeinträchtigungen der Kühlung entstehen offensichtlich an den Übergangsstellen zwischen Kaltkopf und Kupferlitze sowie Kupferlitze und Kontaktkappe, welche nach erfolgreicher Installation der Macor-Schwingplatte und verbesserter thermischer Isolation der Spannzange, bei angekoppeltem Goniometer untersucht und gegebenenfalls optimiert werden sollte.

Wie bei Experimenten zur Photoemissionsspektroskopie üblich, besteht auch im vorliegenden Fall eine experimentelle Herausforderung in der exakten Positionierung des abfragenden Laserpulses auf der zu untersuchenden Probe. Um sicherzustellen, dass der für das bloße Auge nicht sichtbare Abfrage-Laser ($h\nu = 6 \text{ eV}$) den Probenhalter zunächst möglichst nahe dem Fokus des Spektrometers trifft, wurde der Strahlengang zunächst mit Hilfe eines sichtbaren, grünen Laserpointers vorjustiert. Hierzu wurde ein zusätzlicher Spiegel in den Strahlengang eingesetzt, welcher den grünen Justagelaser entsprechend des Strahlengangs des Abfrage-Laser in die Kammer lenkt (Abbildung 4-25). Anschließend kann der Strahl mit Hilfe der im Aufbau befindlichen Spiegel in die Kammer gelenkt werden, wo dessen sichtbare Reflexion an dem verwendeten Probenhalter aus Molybdän mit polierter Oberfläche durch das Justage-Sichtfenster des Spektrometers beobachtet werden kann. Um sicherzustellen, dass der Strahl den Probenhalter in einem Winkel von 45° relativ zur Spektrometerachse trifft, wird eine zentrisch vor das Fenster zur Lasereinkopplung angebrachte Lochblende (L2) verwendet, welche als erster Referenzpunkt dient. Zweiter Referenzpunkt ist die Mitte des Probenhalters selbst, welche mit Hilfe des Justage-Sichtfensters des Spektrometers bei geschlossener Iris-Apparatur desselben bestimmt werden kann. Nachdem der Strahl auf beide Referenzpunkte justiert worden ist, kann die Null-Position des polaren Drehwinkels θ kalibriert werden. Hierzu wurde an dem Laser-Austrittsflansch angebrachtes Millimeterpapier verwendet und der Polarwinkel θ so eingestellt, dass der Strahl im Zentrum des Ausgangsflansches auf das Millimeterpapier trifft. Der so ermittelte Wert für θ diene als Ausgangsposition für alle folgenden Messungen.

Nach der beschriebenen Vorjustage des Strahlengangs wurde eine weitere Blende (L1) eingesetzt um den Strahlengang reproduzierbar zu machen. Anschließend konnte der eingesetzte Spiegel entfernt, und der Abfrage-Laser auf die Lochblenden L1 und L2 justiert werden. Aufgrund der, selbst bei maximal geschlossenen Lochblenden, endlichen Öffnungsradien, kann der Auftreffpunkt des Lasers auf dem Probenhalter mit einer Genauigkeit von $\sim \pm 1,5 \text{ mm}$ in vertikaler und horizontaler Richtung reproduziert werden. Um

die Laserposition im nächsten Schritt weiter zu optimieren, wurde ein Probenhalter mit einem phosphoreszierenden Plättchen entsprechender Größe versehen und in den Fokuspunkt des Spektrometers gebracht, so dass der nun sichtbar gemachte Auftreffpunkt mit Hilfe des Justage-Sichtfensters und der Irisblende des Spektrometers in dessen Fokus gebracht werden kann.

Auf dem gleichen Probenhalter befindet sich zudem eine Probe aus amorphem Silber (a-Ag), welche zuvor mit einem Glasfaserpinsel präpariert wurde um eine möglichst homogene Oberfläche herzustellen. Nachdem der Laser mit Hilfe des phosphoreszierenden Plättchens positioniert worden ist, kann durch den Manipulator die a-Ag Probe an dessen Position gebracht werden, und zur weiteren Feinpositionierung das Spektrometer selbst verwendet werden. Hierzu eignen sich vor allem die ortsauflösenden Linsenmodi, welche das horizontale Strahlprofil direkt auf den Detektor abbilden.

Abbildung 4-26 zeigt eine hierfür typische Aufnahme im Linsenmodus HM2 (High Magnification 2), welcher die höchste Ortsauflösung bietet und somit für die Positionierung des Lasers am geeignetsten ist. Durch horizontale Verschiebung des Lasers, wandert der Spot auf dem Kamerabild in vertikaler Richtung und kann so zentriert werden.

Die quantitative Vergleichbarkeit mehrerer Messungen, welche mit unterschiedlichen Parametern durchgeführt wurden, setzt einen in Bezug auf die Belichtungszeit linearen Detektor voraus. Um diese Eigenschaft zu untersuchen, wurden mit Hilfe der a-Ag Probe Bilder bei verschiedenen Belichtungszeiten aufgenommen und die über den gesamten Bereich summierten Intensitäten verglichen. Abbildung 4-27 zeigt das Ergebnis dieser Messung. Man erkennt einen deutlich linearen Zusammenhang zwischen Intensität und Belichtungszeit, welcher jedoch um einen Abszissenabschnitt von ~ 50 ms verschoben ist. Bei kürzeren Belichtungszeiten ist die auf die CCD-Kamera einfallende Intensität pro Pixel zu gering, als dass sie von dieser detektiert werden könnte. Somit stellt dieser Wert für die eingestellten Parameter des Spektrometers sowie die verwendete Laserintensität, einen Schwellenwert dar, da bei kürzeren Belichtungszeiten aufgenommene Bilder keine Intensität aufweisen.

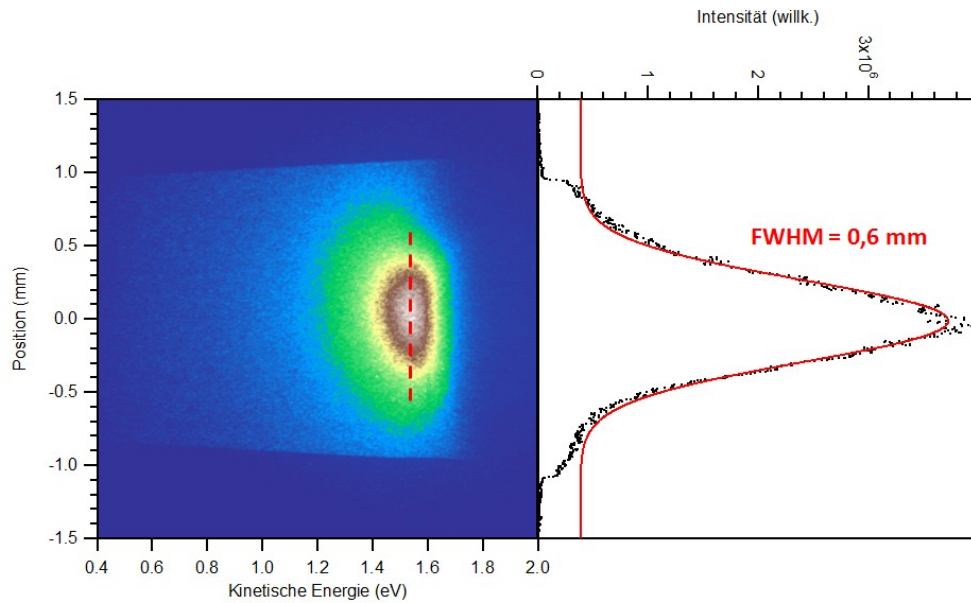


Abbildung 4-26 Aufnahme des Strahlprofils im Linsenmodus HM2 (High Magnification 2) und Bestimmung der Halbwertsbreite. Aufgenommen mit Iris-Durchmesser 45 mm, Spaltkombination 2-B bei Passenergie 20 eV.

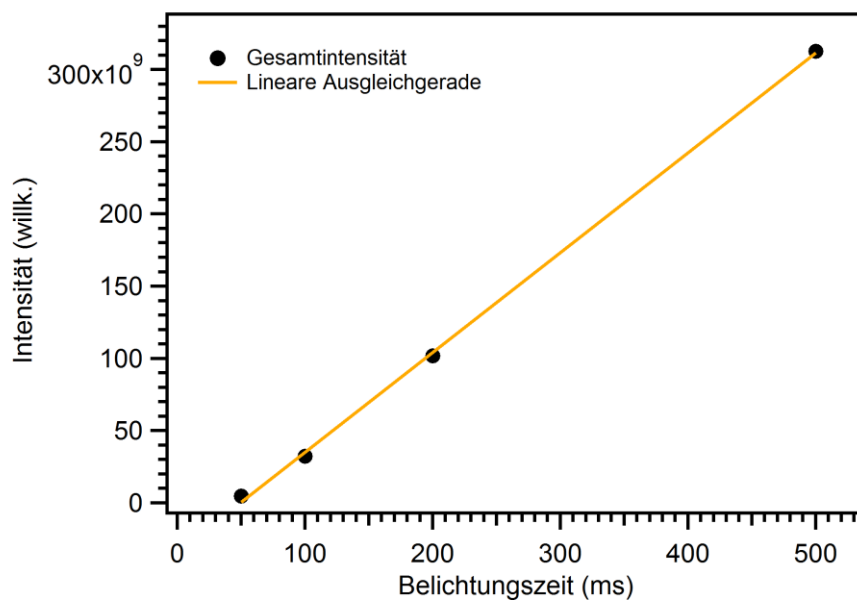


Abbildung 4-27 Aufsummierte Detektorintensität bei verschiedenen Belichtungszeiten. Aufgenommen im LAD Modus (Low Angular Dispersion), Spaltkombination 2-B (vergl. Abbildung 4-19), Iris-Durchmesser 45 mm bei 10 eV Passenergie.

Um den Einfluss der verschiedenen Detektor-Parameter auf die Energieauflösung des hemisphärischen Analysators zu untersuchen, wurden anhand der a-Ag Probe bei Raumtemperatur zahlreiche Messungen bei unterschiedlichen Parameter-Einstellungen (Spalt, Iris-Öffnung) und verschiedenen Linsenmodi durchgeführt und anschließend die Auflösung durch Anpassung geeigneter Funktionen an die Fermikante bestimmt. Abbildung 4-28 zeigt eine Fermikante, welche bei Raumtemperatur mit der Spaltkonfiguration 4-B, einer Passenergie von 10 eV, einem Iris-Durchmesser von 15 mm im Linsenmodus HAD aufgenommen wurde. Als Anpassungsfunktion wurde eine Fermi-Dirac Funktion auf einem linearen Hintergrund, gefaltet mit einer Gaußfunktion verwendet, wobei die Halbwertsbreite der Gaußkurve die Energieauflösung des gesamten Experimentes widerspiegelt. In guter Näherung ergibt sich für die experimentelle Gesamtauflösung des Aufbaus Θ_{tot} :

$$(4.7) \quad \Theta_{tot}^2 = \Theta_{Laser}^2 + \Theta_{Phoibos}^2 + \Theta_{Probe}^2$$

mit den zur Gesamtverbreiterung beitragenden Auflösungen des Laser und des hemisphärischen Analysators Θ_{Laser} und $\Theta_{Phoibos}$. Ebenfalls wird die Gesamtauflösung des Experimentes durch die Qualität der Probenoberfläche beeinflusst, welche aufgrund Inhomogenitäten ebenfalls zu einer Verbreiterung Θ_{Probe} führt. Um die Energieauflösung des Analysators zu ermitteln, muss somit die Bandbreite des verwendeten Lasers berücksichtigt werden. Abbildung 4-29 zeigt das Spektrum des verwendeten Abfragepulses, welches eine Halbwertsbreite von $1,7 \pm 0,07$ nm aufweist, was einer Bandbreite von ~ 50 meV entspricht. Zudem ist aus privater Kommunikation mit der Herstellerfirma bekannt, dass mit der hier verwendeten a-Ag Probe aufgrund ihrer Oberflächenbeschaffenheit, eine Auflösung von maximal ~ 50 meV erreicht werden kann.

Abbildung 4-30 zeigt die rein Energieauflösung des hemisphärischen Analysators bei verschiedenen Iris-Durchmessern, welche sich von $\sim 148 \pm 4$ meV auf $\sim 107 \pm 4$ meV bei einer Verkleinerung des Iris-Durchmessers von 15 mm auf 5 mm verbessert.

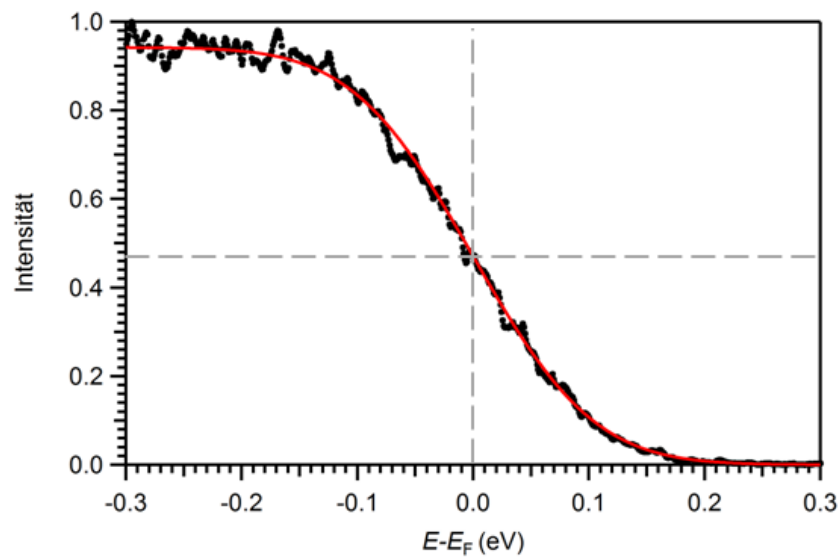


Abbildung 4-28 Fermikante der a-Ag Probe aufgenommen im Linsenmodus HAD (High Angular Dispersion), Iris-Durchmesser 15 mm, Spalt 4-B, Passenergie 10 eV bei Raumtemperatur. Schwarz: Datenpunkte, Rot: Anpassungsfunktion durch linearen Hintergrund + Fermi-Dirac-Funktion gefaltet mit Gaußfunktion. Die anhand der Halbwertsbreite der Gaußkurve bestimmte gesamt-Energieauflösung θ_{tot} ist hier $\sim 163 \pm 3$ meV.

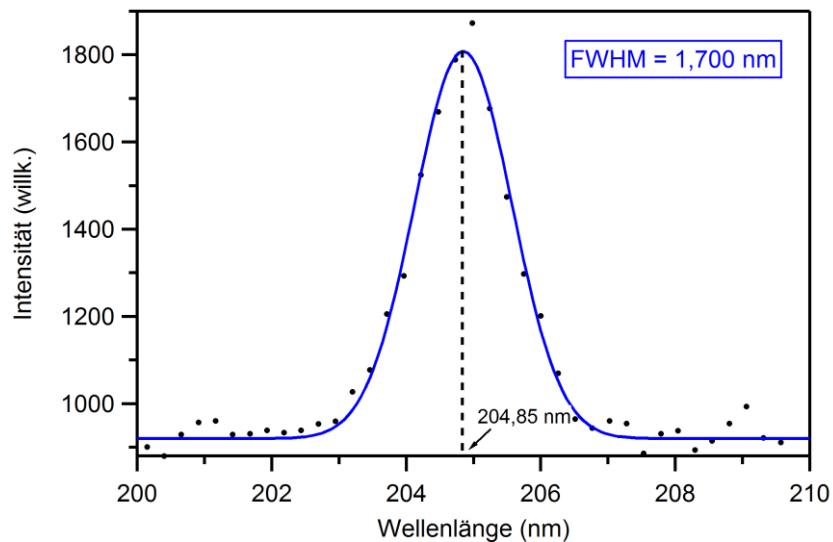


Abbildung 4-29 Spektrum des verwendeten Abfragepulses mit einer durch Anpassung einer Gaußfunktion bestimmten Halbwertsbreite von $1,7 \pm 0,07$ nm, was einer Bandbreite von ~ 50 meV entspricht.

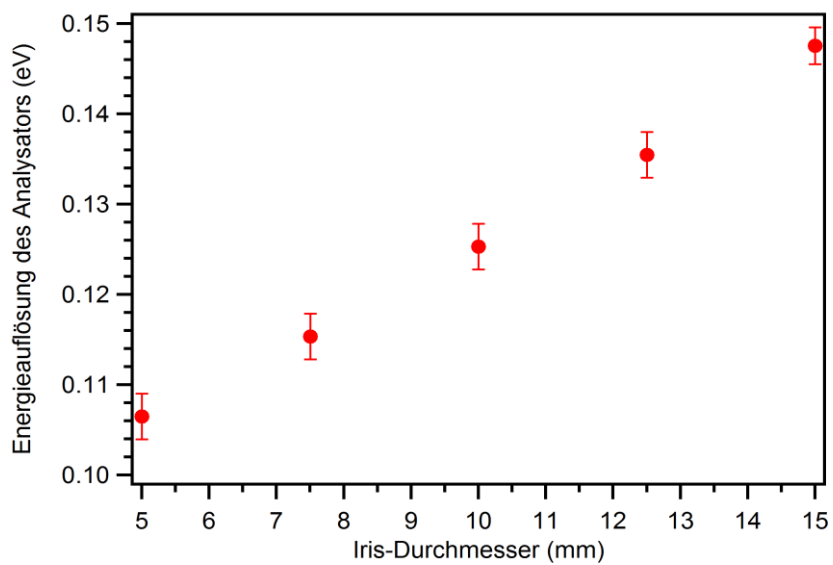


Abbildung 4-30 Energieauflösung des hemisphärischen Analysators in Abhängigkeit des Iris-Durchmessers. Parameter wie in Abbildung 4-28.

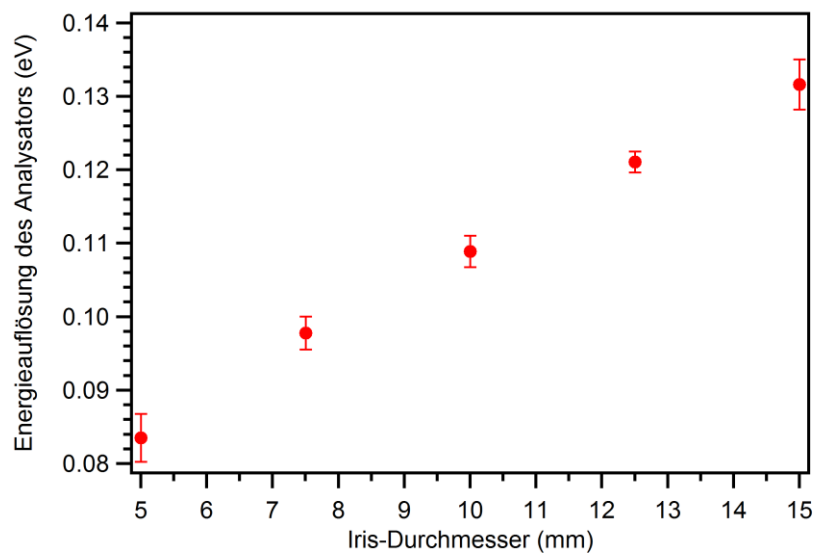


Abbildung 4-31 Energieauflösung des hemisphärischen Analysators in Abhängigkeit des Iris-Durchmessers aufgenommen im Linsenmodus LAD (Low Angular Dispersion), Spaltkonfiguration 2-B, Passenergie 10 eV bei Raumtemperatur.

Um den Einfluss der Spaltkonfiguration auf die Energieauflösung zu untersuchen, wurde die Messungen mit der Spaltkonfiguration 2-B wiederholt, wodurch die Auflösung aufgrund der kleineren Spaltmaße nochmals verbessert werden konnte. Das Ergebnis ist in Abbildung 4-31 dargestellt. Durch die Wahl des kleineren Spaltes konnte die Energieauflösung des Analysators somit auf $\sim 84 \pm 3$ meV verbessert werden.

Zu erwähnen ist hierbei, dass mit kleineren Irisdurchmessern zwar die anhand der oben beschriebenen Anpassungen bestimmte Auflösung verbessert wurde, dies jedoch von einer leichten Verringerung der Anpassungsqualität begleitet wurde, welche, unabhängig vom Linsenmodus, ab einem Irisdurchmesser von $\sim 7,5$ mm auftrat. Dies zeigte sich in einem Bereich von $E - E_F \approx 0,1 - 0,2$ eV, in dem die gemessene Detektorintensität etwas geringer war, als durch die Anpassungsfunktion erwartet (Abbildung 4-32). Das Auftreten dieses Effektes bei, wie vorstehend gezeigt, kleiner werdender Iris-Öffnung bzw. Eingangsspalt legt nahe, dass dieser mit der Anzahl von Photoelektronen korreliert, welche den Analysator passieren. Eine mögliche Ursache wäre eine Nichtlinearität in der Übersetzung in Helligkeitsstufen durch die Multikanalplatten auf dem Fluoreszenzschirm im Bereich niedriger Intensitäten.

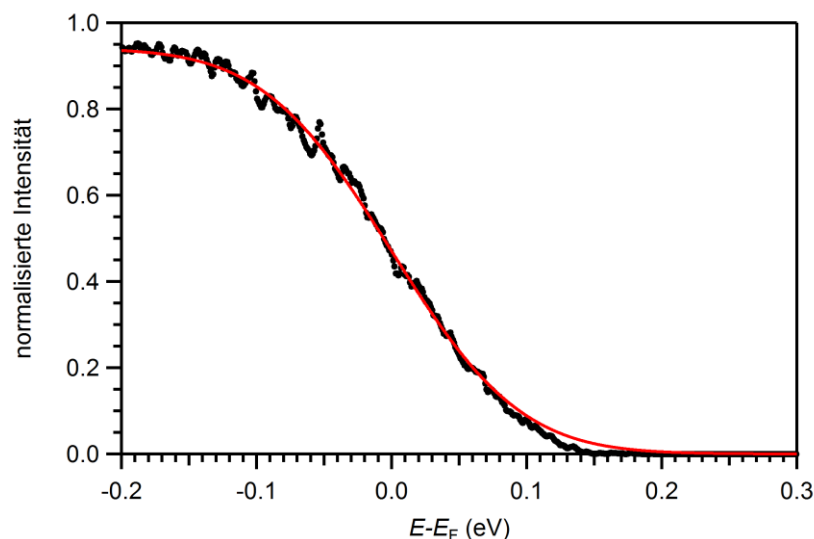


Abbildung 4-32 Fermikante der a-Ag Probe aufgenommen im Linsenmodus HAD (High Angular Dispersion), Iris-Durchmesser 7,5 mm, Spalt 4-B, Passenergie 10 eV bei Raumtemperatur. Im Bereich 0,1 - 0,2 eV liegt die Intensität der gemessenen Datenpunkte (schwarz) unterhalb des erwarteten Verlaufs (rot).

Würde man beispielsweise von einer Intensitätsschwelle ausgehen, welche zur Folge hätte, dass zur Auslösung eines Photons aus dem Fluoreszenzschirm eine Mindestanzahl von Elektronen nötig wäre, würde dies zu einer überproportionalen Herabsetzung der Grauwerte bei einer geringen Elektronenzahl führen, so wie es bei den vorliegenden Experimenten beobachtet wurde.

Auch wenn das prinzipielle Funktionieren der neuen Anlage im vorliegenden Kapitel erfolgreich demonstriert wurde, blieb die erreichte Energieauflösung hinter den Erwartungen zurück. Die hier bestimmte, maximale Energieauflösung betrug ~ 84 meV und liegt damit oberhalb der Werte, welche in anderen Arbeiten ermittelt wurden [95, 96].

Eine Erklärung für diese Abweichung könnte in der Existenz von Restfeldern zwischen der Probenoberfläche und der Eintrittsöffnung des Analysators, beispielsweise aufgrund unterschiedliche Austrittsarbeiten, liegen, welche vor allem die Trajektorien der langsamen Elektronen beeinflussen wodurch die Energieauflösung effektiv herabgesetzt wird.

Da zum Zeitpunkt dieser Arbeit das Anlegen einer BIAS-Spannung noch nicht vollständig implementiert ist (wohl aber der Probenhalter von dem restlichen Goniometer elektrisch isoliert ist), wurde eine Erdung der Probe realisiert, indem der Puck mit einigen dünnen Kupferdrähten umwickelt wurde, welche sternförmig von diesem wegzeigten und durch Berührung mit den Seitenteilen des Goniometers elektrischen Kontakt herstellten. Ein unzureichender Kontakt dieser Drähte könnte zu Schwankungen des Probenpotentials und damit ebenfalls zu einer effektiven Verschlechterung der Energieauflösung führen.

Eine weitere Unsicherheit stellte zudem die untersuchte Probe dar. Aufgrund der manuellen mechanischen Präparation der Probe allein mit Hilfe eines Glasfaserpinsels ist für die erwartete Energieauflösung von ~ 50 meV eine relativ große Unsicherheit zu erwarten. Für eine genauere Bestimmung der Energieauflösung sowie zur weiteren Eingrenzung der verursachenden Faktoren wären demnach Messungen an Proben mit einer höheren Oberflächengüte der nächste Schritt. Vorzugsweise bei, nach Durchführung der Optimierungen in Bezug auf die Probenkühlung, tiefen Temperaturen um den Einfluss der thermischen Energie auf das Spektrum zu minimieren.

5 trARPES an Bi2212

Folgender Abschnitt behandelt die experimentellen Ergebnisse zur zeitaufgelösten Photoemissionsspektroskopie an optimal- und unterdotiertem Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase, welche im Rahmen einer Kooperation mit dem *Brookhaven National Laboratory (New York, USA)*, am Standort Duisburg der Universität Duisburg-Essen gesammelt worden sind und teilweise bereits veröffentlicht wurden [97]. Nach einer einführenden Beschreibung der verwendeten Proben sowie deren Herstellung und Charakterisierung wird in den folgenden Abschnitten die dynamische Antwort des elektronischen Systems von Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase auf die optische Anregung durch den ultrakurzen Laserpuls untersucht. Neben der Dynamik heißer Elektronen werden die transienten Änderungen der elektronischen Struktur diskutiert, welche unter anderem in dem Kontext einer effektiven Änderung der Dotierung betrachtet werden. In Bezug auf die Quantifizierbarkeit eines solchen potentiellen, photoinduzierten Änderung des untersuchten Materials, wird zudem das YRZ-Modell verwendet, welches die unterdotierte Seite des Phasendiagramms (Abschnitt 2.2.2) beschreibt und im Zuge der Diskussion ebenfalls vorgestellt wird.

5.1 Probenpräparation

Die in vorliegender Arbeit verwendeten Bi2212 Proben (Hergestellt von *Gu et al., Brookhaven National Laboratory, Upton, NY 11973, USA*) wurden mit Hilfe des sogenannten Zonenschmelzverfahrens hergestellt. Hierbei wird ein, an den beiden Enden befestigter, zylindrischer Stab in einem schmalen Bereich aufgeschmolzen und so eine Schmelzzone erzeugt. Zur Herstellung eines Einkristalls wird die Schmelzzone mit einem sogenannten

Impfkristall in Berührung gebracht, worauf sich die atomare Struktur der erkaltenden Schmelze der des Impfkristalls anpasst. Durch Bewegung des Stabes oder der Heizvorrichtung durchwandert die Schmelzzone den Stab wodurch sich über den gesamten Bereich ein Einkristall bildet. Zudem verbleiben Verunreinigungen weitestgehend in der Schmelzzone und lagern sich somit am Ende Stabes ab, welches nach Beendigung des Vorgangs entfernt werden kann.

Für die Herstellung der hier verwendeten Bi2212 Proben wurde ein Pulvergemisch bestehend aus Bi_2O_3 , SrCO_3 , CaCO_3 und CuO verwendet, welches zunächst mit Hilfe eines Infrarot-Strahlungsofens bei einer Temperatur von $T = 810^\circ\text{C}$ für 24 Stunden ausgeheizt wurde. Danach wurde das Gemisch in Stabform gebracht und unter einem Druck von 6000 kg/cm^2 zusammengepresst bevor es dann bei einer Temperatur von 860°C für 72 Stunden gesintert wurde. Anschließend wurde aus den so hergestellten Stäben unter Anwendung des oben beschriebenen Verfahrens ein Einkristall von optimal dotiertem Bi2212 erzeugt [98]. Um die in vorliegender Arbeit ebenfalls untersuchten, unterdotierten Proben herzustellen, wird der Kristall für einige Tage (abhängig von der gewünschten Zieldotierung) bei $\sim 500^\circ\text{C}$ ausgeglüht, wodurch sich der Sauerstoffgehalt verringert.

Zur Charakterisierung der so erzeugten Dotierungen werden die Übergangstemperaturen T_c der Supraleiter durch SQUID-Messungen (für *Superconduction Quantum Interference Device* [31]), anhand des Einsetzens von Diamagnetismus bestimmt und anschließend mit der berühmten Presland-Formel [99] in die entsprechende Dotierung x umgerechnet:

$$(5.1) \quad \frac{T_c}{T_{c\max}} = 1 - 82.6 * (x - 0.16)^2$$

mit der kritischen Temperatur für optimal dotiertes Bi2212 $T_{c\max} = 91 \text{ K}$.

Um die Bi2212 Proben für das Experiment vorzubereiten werden diese zunächst in dünne Plättchen mit einer Größe von etwa $1 \times 1 \times 0,1 \text{ mm}$ (entlang der Kristallachsen a , b und c) geschnitten. Mit Hilfe eines UHV tauglichen 2-Komponenten Silber-Epoxid Klebers werden diese dann mit ihrer flachen Seite (die durch die Achsen a und aufgespannte Ebene) auf einen Probenpin geklebt (Abbildung 4-8), wobei aufgrund der Anisotropie des Materials die Orientierung entsprechend des zu untersuchenden Bereiches der Brillouin-Zone zu beachten ist, welche zuvor mit Hilfe von Röntgenbeugungsexperimenten durch des Laue-Verfahrens

bestimmt wurde (Abbildung 5-1). Bevor die Probe in die Vakuumkammer geschleust wird, wird die Oberfläche mit einem gewöhnlichen Stück Tesafilm gereinigt, in dem dieses zunächst gleichmäßig auf die Probe aufgeklebt wird. Das hat zur Folge, dass beim Abziehen des Tesafilms grobe Verunreinigungen sowie unzusammenhängende Probenstücke entfernt werden, wodurch die Wahrscheinlichkeit einer erfolgreichen Spaltung erhöht wird. Anschließend wird auf die so am Probenpin befestigten Kristalle ein Keramikstäbchen geklebt, welches dann am Ort des Experimentes innerhalb der UHV-Kammer mit Hilfe eines Schraubenziehers (Abschnitt 4.2) lateral von der Probe weggedrückt wird, bis es zur Spaltung des Kristalls kommt und so eine saubere, messbereite Oberfläche entsteht.

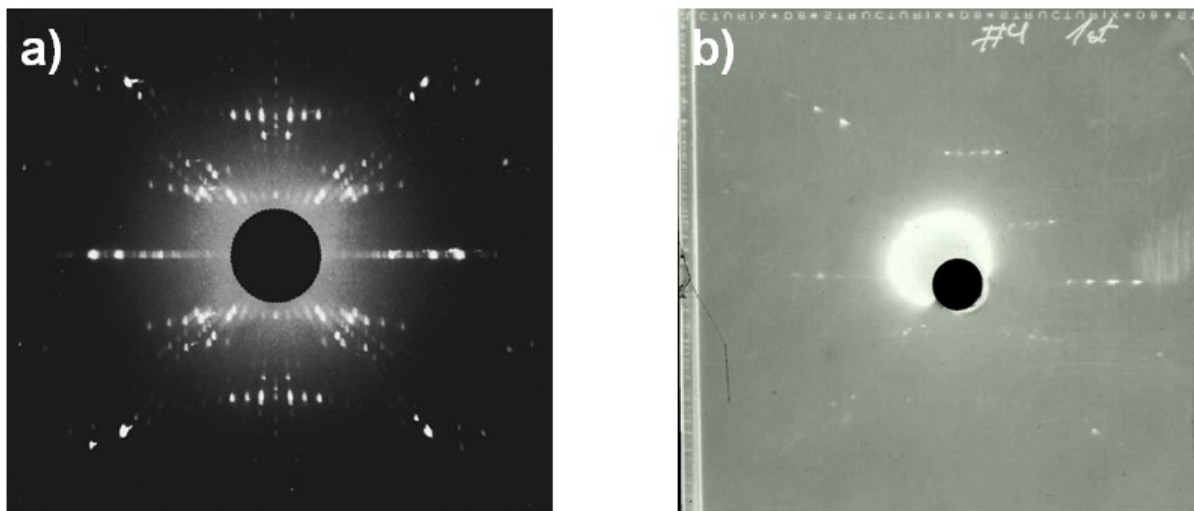


Abbildung 5-1 Laue Aufnahmen von optimal dotierten Bi2212 Proben zum Zwecke der Probenorientierung. a) Referenzbild aus [100]. b) Aufnahmen einer in vorliegender Arbeit verwendeten Probe, welche mit Hilfe des Referenzbildes in a) orientiert wurde. Die waagrecht verlaufenden Signaturen entsprechen der Richtung der a-Achse des Kristalls (Abbildung 2-5).

Um einen gezielten Bereich der Brillouin-Zone im Experiment untersuchen zu können, muss die Probe durch Einstellen der zur Verfügung stehenden Winkel in die richtige Position relativ zum verwendeten Spektrometer gebracht werden. Die geometrische Beschaffenheit des Experimentes sowie dessen Winkelkonventionen sind in Abbildung 5-2 dargestellt.

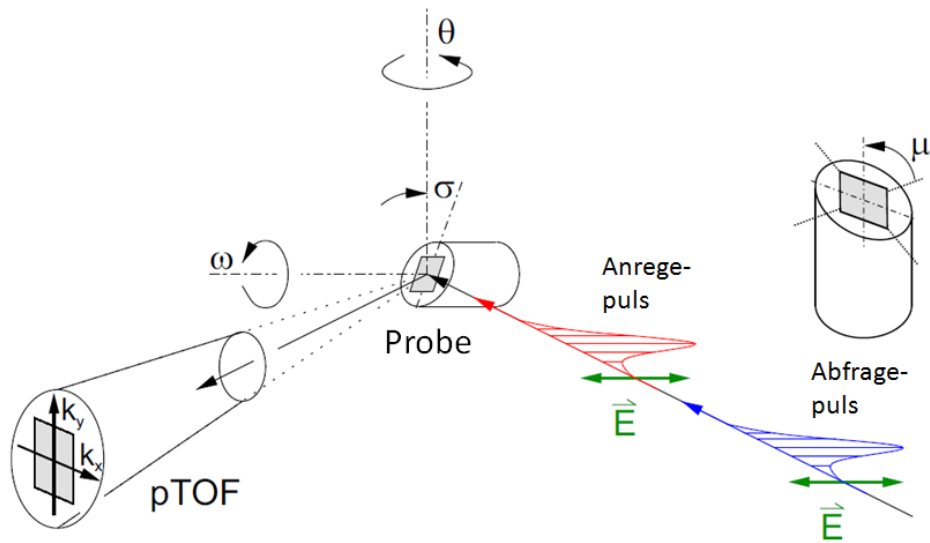


Abbildung 5-2 Geometrie des Experimentes. θ , Rotation um die z-Achse des Manipulators. ω , Rotation des Probenhalters um den Azimuthwinkel. σ , Der Abschrägungswinkel des Probenhalters (in vorliegender Arbeit 45°) und μ , die Orientierung der Probe relativ zum abgeschrägten Probenhalter. Im Koordinatensystem des Spektrometers liegt x in der Ebene des Lasertisches während y nach oben zeigt und z entlang der Spektrometerachse verläuft und von der Probe weg zeigt. Nach [35].

Um nun bei gegebener Einstellung der in Abbildung 5-2 erläuterten Winkel aus den vom pTOF (Abschnitt 4.2.2) gemessenen Werten für k_x und k_y die tatsächlichen Positionen in der Brillouin-Zone der Probe k'_x und k'_y zu ermitteln, bedarf es einer Koordinatentransformation mit Hilfe der folgenden Matrizen:

$$(5.2) \quad R_\theta = \begin{pmatrix} \cos \theta & 0 & \sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix}$$

$$(5.3) \quad R_\omega = \begin{pmatrix} \cos \omega & \sin \omega & 0 \\ -\sin \omega & \cos \omega & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$(5.4) \quad R_\sigma = \begin{pmatrix} \cos \sigma & 0 & -\sin \sigma \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \sigma & 0 & \cos \sigma \end{pmatrix}$$

$$(5.5) \quad R_\mu = \begin{pmatrix} \cos \mu & \sin \mu & 0 \\ -\sin \mu & \cos \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$(5.6) \quad \vec{k}' = \begin{pmatrix} k'_x \\ k'_y \\ k'_z \end{pmatrix} = R_\theta \cdot R_\omega \cdot R_\sigma \cdot R_\mu \cdot \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \\ k_z \end{pmatrix}$$

Wobei k_z mit der kinetischen Energie des Photoelektrons in Zusammenhang steht (Abschnitt 3.1.3). Bei Verwendung des TOF (Abschnitt 4.2.1), welches keine Positionssensitivität besitzt, ist folglich $k_x = k_y = 0$.

Die Genauigkeiten, mit welcher die im Experiment zugänglichen Winkel eingestellt werden können, sind mit unterschiedlich großen Unsicherheiten behaftet. Die größten Fehler entstehen hier bei den Winkeln ω und μ , da ersterer nur relativ ungenau mit Hilfe eines Schraubenziehers in dem oberen Kammerteil anhand einer Skala mit 30° Schritten eingestellt werden kann und μ anhand der teils undeutlichen Lauebilder „per Hand“ vor dem Einschleusen in das Experiment orientiert wird. Dies hat zur Folge, dass die gemäß Formel (5.6) berechneten Werte von den realen Werten abweichen. Um dies im Nachhinein zu korrigieren werden die anhand der aufgenommenen Daten berechneten Fermiflächen (z.B. Abbildung 5-11 a und b) mit theoretischen Vorhersagen (YRZ-Modell, siehe Abschnitt 5.3.1) verglichen und unter Veränderung der zugrunde liegenden Werten solange neu berechnet, bis eine Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment gefunden ist. Da jeder der einstellbaren Winkel einen anderen Einfluss auf die resultierende Orientierung hat, lässt sich eine eventuelle Falscheinstellung eines Winkels nicht durch die Änderung eines anderen Winkels korrigieren. Aufgrund dieser Tatsache ist eine gefundene Einstellung, welche zu einer Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment über den gesamten durch das pTOF zugänglichen Bereich führt, eindeutig und kann nur erreicht werden, wenn alle Winkelparameter die richtigen Werte besitzen. Der resultierende Fehler für die ermittelten Fermiflächenwinkel (Abschnitt 5.3) ist daher klein und kann mit $\pm 1^\circ$ abgeschätzt werden. Zudem ist dieser Fehler systematischer Natur.

5.2 Pumpinduzierte Änderung der elektronischen Struktur von optimal dotiertem Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase

Der experimentelle Aufbau wurde bereits ausführlich in Abschnitt 4 beschrieben, wobei im vorliegenden Fall das pTOF Spektrometer (Abschnitt 4.2.2) verwendet wurde. Wie dort beschrieben wurden im vorliegenden Fall ein p-polarisierter Anregepuls mit $h\nu_{pump} = 1,5$ eV und 40 fs Dauer sowie ein s-polarisierter Abfragepuls von $h\nu_{pump} = 6$ eV und 90 fs bei einer Wiederholrate von 250 kHz verwendet, wobei der Strahldurchmesser hier $\sim (100 \mu\text{m})^2$ für den Anrege und $\sim (50 \mu\text{m})^2$ für den Abfragepuls betrug. Die zeitliche Auflösung, welche sich aus der zeitlichen Faltung der beiden Laserpulse ergibt, betrug 100 ± 5 fs. Diese konnte anhand der Population heißer Ladungsträger in einem Energieintervall $E - E_F = 1,4 - 1,5$ eV oberhalb des Ferminiveaus E_F als Funktion der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfragepuls ermittelt werden. In diesem Energieintervall ist die Lebensdauer der Ladungsträger vernachlässigbar klein, so dass die Population direkt die Kreuzkorrelation der beiden Pulse widerspiegelt. Die Energieauflösung wurde anhand von nicht-angeregten Spektren, mittels einer Anpassung der Fermi-Dirac Verteilung bestimmt (gemäß Abschnitt 4.3.5) und betrug $\sim 55 \pm 5$ meV (Abbildung 5-16 b). Die Impulsauflösung ergibt sich durch das pTOF Spektrometer und beläuft sich auf $\sim 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ für beide Impulsrichtungen.

Die verwendeten, optimal-dotierten Bi2212 Proben wurden bei einer Temperatur von 100 ± 5 K *in situ* bei einem Druck von $p < 10^{-10}$ mbar gespalten. Mit Hilfe des pTOF Spektrometers (4.2.2) wurden vier-dimensionale Datensätze (Photoelektronenintensität als Funktion der Zeit, Energie und zweier unabhängiger Impulsrichtungen) bei einer Expositionsdauer von 60 s pro Anrege-Abfragepuls Verzögerung in 20 aufeinander folgenden Durchgängen aufgenommen. Die typische Elektronenzählrate betrug hierbei ~ 100 kHz. Im Anschluss an die Messungen wurden die Proben zudem mit Hilfe einer kalibrierten Knudsen-Zelle mit einer $\sim 2,8$ nm dicken Bleischicht bedampft, wodurch die Fermienergie durch Anpassung der Spektren referenziert werden konnten.

Abbildung 5-3 a)-c) zeigt exemplarisch die energieabhängige Intensität der Photoelektronen als Funktion des Impulses $k - k_F$ in einer Falschfarbendarstellung bei einer eingestrahnten Fluenz von $300 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ vor ($t = -5$ ps), während ($t = 0$ fs) und nach ($t = 100$ fs) der Anregung. Die Richtung des Impulsvektors verläuft hierbei entlang der nodalen Linie $(0,0) - (\pi,\pi)$ (Abbildung 5-10). Auf die Rohdaten wurde zudem der Lucy-Richardson

Algorithmus angewandt, welcher die Daten hinsichtlich der Verbreiterung aufgrund der endlichen spektralen Instrumentenauflösung entfaltet [101], um so die photoinduzierten, spektralen Änderungen deutlicher zu machen, anhand derer die im Folgenden diskutierten Effekte erkennbar werden. Zunächst wird durch Abbildung 5-3 a)-c) deutlich, dass die Anregung durch den Laserpuls zu einer Umverteilung des spektralen Gewichtes führt. Während bereits bei $t = 0$ fs die Intensität unterhalb von E_F entlang des Bandes stark reduziert wird, ist oberhalb E_F eine deutliche Erhöhung der Intensität zu beobachten, wobei sich diese Umverteilungen bis zu einer Verzögerungszeit von $t = 100$ fs weiter ausprägen. Neben diesen offensichtlichen Veränderungen in der Intensität des Photoemissionssignals, ergeben sich hierdurch zwei weitere, wenn auch kleine Effekte. Zum einen ist dies eine Verschiebung des elektronischen Bandes in Richtung negativer k -Werte, was eine Änderung des Fermiflächenvektors k_F mit sich bringt. Dies wird anhand von Abbildung 5-3 d) deutlich, in der die Impulsverteilungskurven (MDC) in einem Energieintervall von ± 10 meV um das Fermi-niveau E_F für $t = -5$ ps und $t = 0$ fs sowie die Differenz beider Verzögerungszeiten dargestellt sind. Eine Verschiebung der Maxima, welche den Fermiflächenvektor repräsentieren, wurde für $t = 0$ fs gegenüber dem nicht-angeregten Fall bei $t = -5$ ps beobachtet. Der zweite Effekt besteht in einer Änderung der Steigung in der Dispersion des Bandes, was gleichbedeutend mit einer Änderung in der effektiven Masse m^* der Quasiteilchen ist. Abbildung 5-3 e) zeigt die Breite $\Delta k(E, t)$ der MDCs als Funktion der Energie, welche durch die Anpassung einer Lorenzkurve an die gemessenen Daten ermittelt wurde. Man erkennt deutlich eine pumpinduzierte Änderung der MDC Breiten im Bereich $-70 \text{ meV} < E - E_F < 0 \text{ meV}$. Beide beschriebenen Effekte werden in den folgenden Abschnitten detailliert diskutiert.

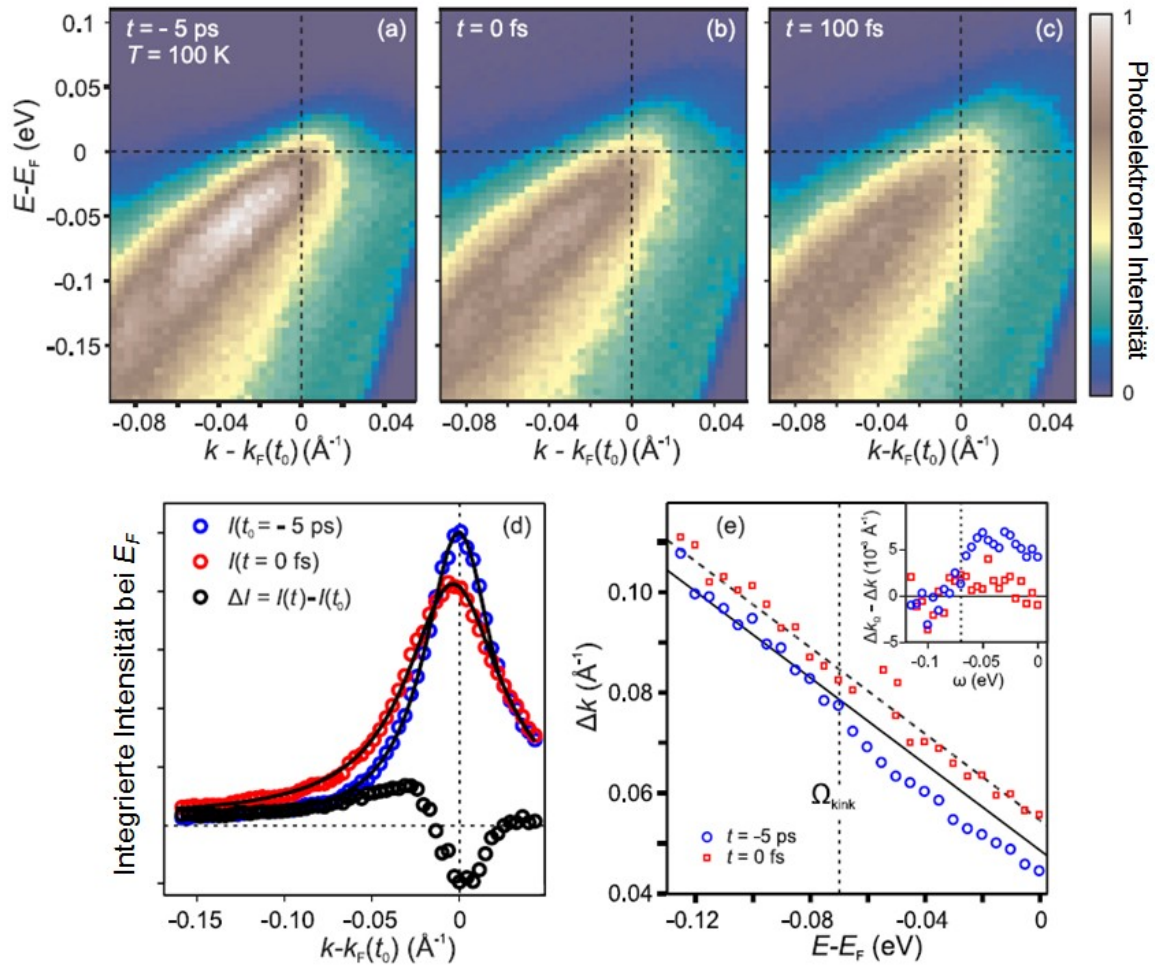


Abbildung 5-3 a)-c) Energieabhängige Photoelektronen-Intensität als Funktion des Elektronenimpulses $k - k_F$ entlang der nodalen Linie nach Anwendung des Lucy-Richardson Entfaltungs-Algorithmus [101] in einer Falschfarbendarstellung. Die eingestrahlte Anregungsfluenz betrug $300 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. d) Intensität des Photoemissionssignals in einem Energieintervall von $\pm 10 \text{ meV}$ um E_F als Funktion des Elektronenimpulses vor und während der optischen Anregung durch den Anregepuls, sowie deren Differenz. Die schwarzen Linien sind Anpassungen durch ein Lorentz-Profil. e) MDC Breiten als Funktion der Bindungsenergie vor und während der Anregung für $300 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Die durchgezogene, schwarze Linie (Δk_Ω) ist eine lineare Anpassung an die Datenpunkte für $t = -5 \text{ ps}$ und $E - E_F < 70 \text{ meV}$. Die gestrichelte Linie besitzt die gleiche Steigung und ist um 6 meV nach oben verschoben. Um die pumpinduzierte Änderung zu verdeutlichen ist die Differenz $\Delta k_\Omega - \Delta k$ für beide Verzögerungszeiten in dem eingelassenen Feld dargestellt.[97]

5.2.1 Änderung der effektiven Masse m^*

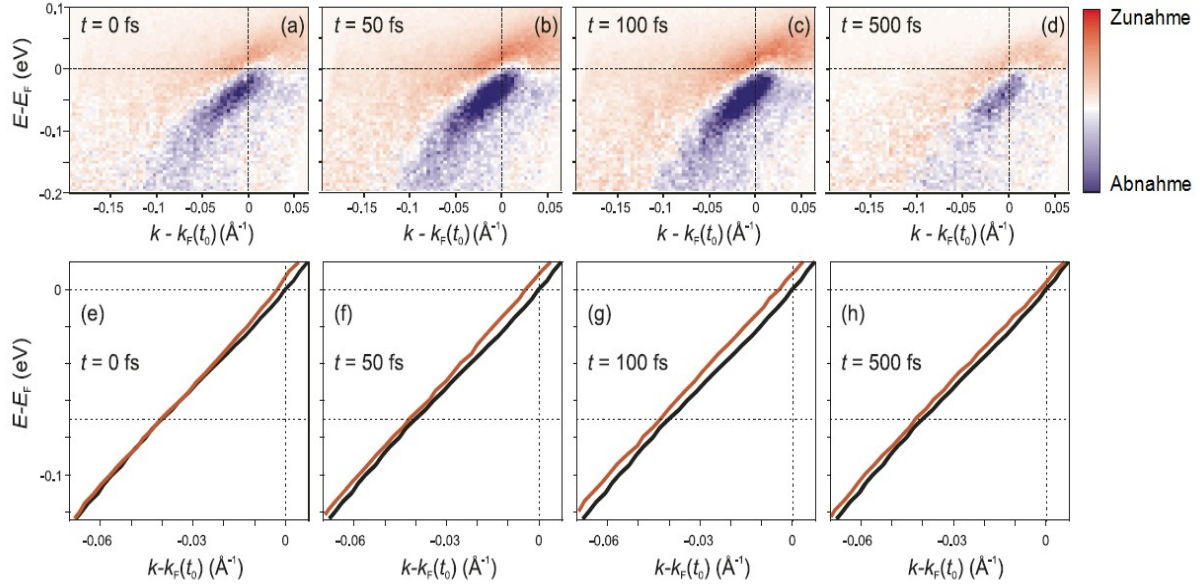


Abbildung 5-4 a)-d) Photoinduzierte Änderungen des spektralen Gewichts in einer rot-blau Differenzdarstellung $I(t) - I(t_0)$ als Funktion der Energie und des Impulses für verschiedene Verzögerungszeiten. e)-h) zeigt die zugehörigen Dispersionen, welche durch Anpassung der MDCs mittels Lorenz-Profilen anhand Ihrer Maxima bestimmt wurden (Abbildung 5-3 d). Die schwarzen Linien zeigen zum Vergleich den unbeeinflussten Verlauf der Dispersion vor Anregung durch den Laserpuls. Die gepunkteten Linien bei E_F , k_F und der „Kink“-Energie $E - E_F = -70$ meV dienen zur besseren Veranschaulichung. [97]

Die Umverteilung des spektralen Gewichtes, verursacht durch die optische Anregung durch den Pumpimpuls ist für verschiedene Verzögerungszeiten in Abbildung 5-4 a)-d) in einer Differenz-Farbdarstellung gemäß $\Delta I(E, k, t) = I(E, k, t) - I(E, k, t_0)$, mit $t_0 = -5$ ps abgebildet. Die k -Richtung entspricht der nodalen Linie von $(0,0) - (\pi,\pi)$. Wie dort gezeigt, findet die größte Abnahme der kohärenten Quasiteilchen im Bereich zwischen der „Kink“-Energie von -70 meV und E_F statt, während die größte Zunahme in einem Bereich $E(k)$ zu beobachten ist, welcher in Bezug auf das ungestörte Band zu kleineren k -Vektoren und höheren Energien verschoben ist. Diese Beobachtung lässt darauf schließen, dass auch im angeregten Zustand des Systems eine wohldefinierte Dispersion existiert, welche sogar unter dem starken Einfluss

des Anregepulses und unter Anwesenheit des Laserfeldes vorhanden ist. Zur Quantifizierung der Dispersionen wurden jeweils die Maxima der MDCs bei konstanten Energien im Abstand von 5 meV (jeweils integriert innerhalb eines Intervalls von $\pm 2,5$ meV) durch Anpassung einer Lorenzkurve mit einem linearen Hintergrund bestimmt. Der so bestimmte Verlauf der Dispersionen ist für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Anrege- und Abfragepuls in Abbildung 5-4 e)-h) dargestellt. Vergleicht man diese für $t = 0$ fs mit der ungestörten Dispersion bei einer negativen Verzögerungszeit (schwarze Linie in Abbildung 5-4 e)-h)) so erkennt man deutlich eine photoinduzierte Veränderung der Steigung der Dispersionen, welche vor allem in dem Bereich $-70 \text{ meV} < E - E_F < 0 \text{ meV}$ auftritt. Wie auch in Abbildung 5-3 e) veranschaulicht, wird die Abweichung von einem konstant linearen Verlauf von $\Delta k(E)$ der ungestörten Dispersion, welche bei der „Kink“-Energie von -70 meV zu beobachten ist, durch den Einfluss des Anregepulses deutlich reduziert. Dies ist gleichbedeutend mit einer Verringerung der effektiven Masse m^* , welche anhand einer linearen Anpassung an die Dispersion in der Nähe der Fermienergie bestimmt wurde. Die Tatsache, dass die Veränderung der Steigung hauptsächlich in dem erwähnten Energiebereich auftritt, ist zudem konsistent mit der Tatsache, dass es die größte spektrale Veränderung des kohärenten Gewichts ebenfalls in diesem Energiebereich zu beobachten ist. Bei $t = 50$ fs hat sich die photoinduzierte Änderung der Dispersion $E(k)$ bereits teilweise wieder zurückgebildet. Die relative Veränderung der effektiven Masse, ist gemäß

$$(5.7) \quad m_{\%}^*(t) = \frac{m^*(t)}{m^*(t_0)} = \frac{v_F(t_0)}{v_F(t)}$$

als Funktion der Zeit für verschiedene Fluenzen in Abbildung 5-5 dargestellt.

Innerhalb der experimentellen Meßgenauigkeit, kann eine Veränderung der effektiven Masse für Anregefluenzen von $> 35 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ beobachtet werden, was jedoch aufgrund der begrenzenden Statistik nicht notwendigerweise eine Schwelle darstellt. Zudem tritt, ebenfalls innerhalb der Meßgenauigkeit, die ultraschnelle Änderung im Prinzip instantan, ohne erkennbare Verzögerung zu der optischen Anregung auf. Auch die Rückbildung des Effektes ist zeitlich an die Kreuzkorrelation des Anrege- und Abfragepulses gekoppelt, weshalb hieraus der Schluss gezogen werden kann, dass die Änderung in m^* direkt durch die Anwesenheit des Anregepulses verursacht wird. Da zudem bereits für eine Verzögerungszeit von $t = 50$ fs eine deutliche Abnahme der Änderung in m^* auszumachen ist, stellt dies eine

obere Grenze für die zeitliche Dauer der Antwort des Systems auf die optische Anregung dar, was wiederum die Frage nach den verantwortlichen Wechselwirkungen aufwirft, welche für die Modifizierung der effektiven Masse verantwortlich sind.

Die optische Anregung führt zu einem Aufheizen des Gitters, was in der Regel durch das 2-Temperaturen Modell oder durch andere, weiter entwickelte Theorien beschrieben wird [25, 102, 103]. Das elektronische System, welches vornehmlich die Energie des Anregepulses absorbiert, gibt nach der Anregung diese Energie durch Elektron-Phonon Wechselwirkung sukzessive an das Gitter ab. Das Erreichen einer wohldefinierten Gittertemperatur, was eine thermalisierte Verteilung der Anregungen in optische und akustische Phononen beinhaltet, geschieht auf einer Zeitskala von Pikosekunden und kann daher als die für die Änderung der effektiven Masse zugrundeliegenden Wechselwirkung ausgeschlossen werden. Gleiches Argument gilt ebenfalls für die ultraschnelle Ankopplung des angeregten elektronischen Systems an die optischen Phononen, so wie sie als Ursache für den „Kink“ bei $E - E_F = -70$ meV vorgeschlagen wurden [18]. Die Ankopplung dieser ultraschnell-angeregten optischen Phononen an die akustischen Moden würde ebenfalls auf der oben erwähnten Zeitskala von Pikosekunden stattfinden. Zudem wird dies durch die in Abbildung 5-5 dargestellte Fluenzabhängigkeit der Änderung der effektiven Masse unterstützt. Würde die Relaxation des angeregten Zustandes vornehmlich durch Elektron-Phonon Wechselwirkung erfolgen, so müsste eine größere Anregefluenz zwangsläufig auch in einer höheren Temperatur des Gitters resultieren, was eine deutlichere Ausprägung des beobachteten Effektes bei größeren Verzögerungszeiten zur Folge hätte. Stattdessen kann eine Änderung in der effektiven Masse für alle Fluenzen nur bis $t = 50$ fs nach der optischen Anregung beobachtet werden, während der Effekt für $t = 100$ fs bei keiner der untersuchten Fluenzen mehr festzustellen ist. Überdies ist es unklar, inwieweit solche optisch angeregten Phononen-Moden direkt an die Fermifläche koppeln, in deren Nähe die Änderung in der Steigung der Dispersion am deutlichsten ausgeprägt ist, da die größte Änderung im Bereich des „Kink“ bei -70 meV zu erwarten wäre.

Aufgrund der kurzen Zeitskalen des Effektes von ~ 50 fs scheint es dahingegen plausibel anzunehmen, dass die zugrunde liegenden Wechselwirkungen elektronischen Ursprungs sind, etwa durch die Auflösung der elektronischen Korrelationen, verursacht durch die Anwesenheit des Anregepulses, wie von Sentef *et al.* vorgeschlagen wurde [104]. Demnach führt das elektrische Feld des Anregepulses zu einer Störung der Kohärenz der elektronischen Zustände anstatt zu einer Entkopplung der Ladungsträger von ihrer Umgebung. Folglich könnten Korrelationseffekte, welche für die Ausbildung des „Kink“ mitverantwortlich sind,

indem sie die effektive Masse m^* vornehmlich in der Nähe des Fermi-niveaus beeinflussen durch die Anwesenheit des Anregepulses gestört sein, was wiederum zu einer Abschwächung des „Kink“ führen würde. Darüber hinaus zeigt die Art der fehlende Renormalisierung oberhalb der „Kink“-Energie, so wie sie in Abbildung 5-4 e) zu beobachten ist ein, für den Falle einer Beeinflussung der Elektron-Boson Wechselwirkung durch den Anregepuls unerwartetes Verhalten. Wie aus Abbildung 5-4 e) hervorgeht, ändert sich m^* dahingehend, dass der größte Unterschied der Dispersionen für $t = 0$ fs im Bereich nahe der Fermienergie auszumachen ist, während diese bei der „Kink“-Energie von -70 meV nahezu unverändert bleiben. Im Falle einer pumpinduzierten Änderung der Elektron-Boson Kopplung würde man hingegen die größte Änderung im Bereich des „Kink“ erwarten, während der Bereich um das Fermi-niveau weitgehend unbeeinflusst bleiben sollte [73]. Dies deutet darauf hin, dass auch elektronische Korrelationen an der Bildung des „Kink“ beteiligt sind und dass die optische Anregung hier vornehmlich in einer Beeinflussung dieser unter der Anwesenheit des Feldes des Anregepulses resultiert.

Aktuelle Veröffentlichungen zeigen zudem, dass ein ähnlicher Effekt ebenfalls in der supraleitenden Phase von Bi2212 auftritt [29]. Dabei wurde das „Aufweichen“ des -70 meV „Kinks“ in Form einer Abnahme der elektronischen Selbstenergie nach einer optischen Anregung mit Fluenzen zwischen 4 und 24 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ beobachtet, wobei eine Rückbildung dieses Effektes auf einer Zeitskala von ~ 10 ps stattfindet. Die beobachtete Änderung der Dispersionen entsprach dabei der weiter oben beschriebenen erwarteten Charakteristik im Falle einer Elektron-Boson Wechselwirkung (größte Änderung bei der „Kink“-Energie). Die Antwort des elektronischen Systems in der supraleitenden Phase unterscheidet sich folglich deutlich von der in der vorliegenden Arbeit untersuchten „Pseudogap“-Phase, was neben einem aufgrund der niedrigeren Fluenzen unterschiedlichen Anregungsregime durch die erhöhte Empfindlichkeit des System unterhalb T_c in Bezug auf optische Anregungen aufgrund der Anwesenheit des supraleitenden Kondensats begründet werden kann [19, 26, 28]. Weiterhin konnten in [29] keine Effekte dieser Art oberhalb von T_c beobachtet werden, was jedoch aufgrund der niedrigen dort verwendeten Fluenzen in keinem Widerspruch zu den hier diskutierten Ergebnissen steht, da bei vorliegendem Experiment bei einer Fluenz von 35 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ der Effekt ebenfalls nicht mehr beobachtet werden konnte. Darüber hinaus entzieht sich die kurze Zeitskala des Effektes von ~ 50 fs der experimentellen Zugänglichkeit der erwähnten Arbeit.

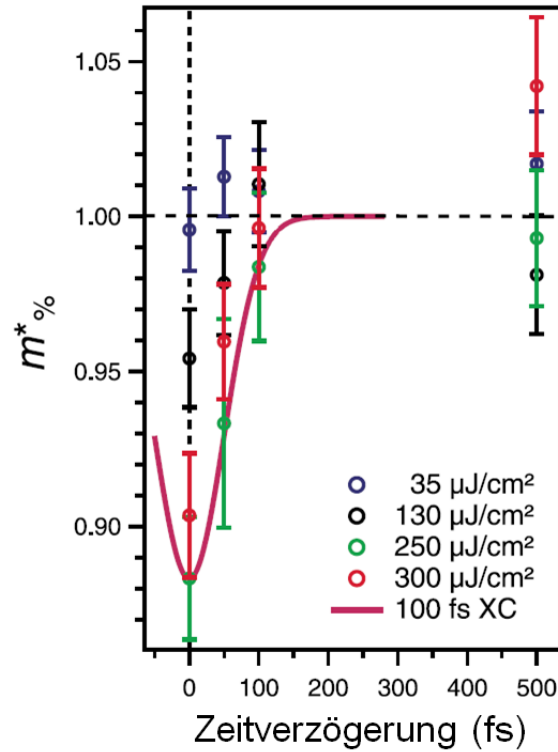


Abbildung 5-5 Photoinduzierte, relative Änderung der effektiven Masse $m^*_{\%}$ als Funktion der Verzögerungszeit für verschiedene Anregefluenzen gemäß Formel (5.7). Die bei einer gegebenen Verzögerungszeit t bestimmte effektive Masse $m^*(t)$ wird auf die effektive Masse im Gleichgewichtszustand $m^*(t_0)$, vor der optischen Anregung, normiert. Die pinke Linie beschreibt Kreuzkorrelation von 100 fs des Anrege- und Abfragelaserpulses. [97]

5.2.2 Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F

Der zweite hier behandelte Effekt ist eine photoinduzierte Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F in Richtung negativer k -Werte, welche, wie bereits erwähnt, in Abbildung 5-3 d) deutlich wird. In Abbildung 5-4 e)-h) ist dieser Effekt ebenfalls für verschiedene Anrege-Abfrage Verzögerungszeiten anhand unterschiedlichen Durchstoßpunkte der bestimmten Dispersionen mit E_F zu erkennen. Im Gegensatz zu der Änderung der effektiven Masse m^* , welche, wie oben beschrieben, anhand der Wechselwirkung mit dem Laserfeld des Anregepulses erklärt werden kann und sich dementsprechend bei $t = 50$ fs in Bezug auf ihren Maximalwert bei $t = 0$ fs bereits

zurückgebildet hat, vergrößert sich die Änderung von k_F stetig bis diese bei einer Verzögerungszeit von $t = 100$ fs ihr Maximum erreicht und dann anschließend bei $t = 500$ fs nahezu ihren Ausgangswert erreicht. Aufgrund des unterschiedlichen zeitlichen Verlaufes beider hier diskutierter Effekte wird zunächst deutlich, dass diese voneinander unabhängig sein müssen.

Im Rahmen des hier betrachteten Experimentes wurde die Verschiebung von k_F für verschiedene eingestrahlte Anregefluenzen (35, 130, 250 und 300 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$) bei verschiedenen Zeiten nach der optischen Anregung untersucht. Bei einer gegebenen Verzögerungszeit wurde k_F anhand der durch die MDC Maxima (5.2.1) bestimmten Dispersionen mittels einer linearen Anpassung im Bereich zwischen $E - E_F = -25$ und 5 meV bestimmt, welches durch den Durchstoßpunkt der so ermittelten Gerade mit der Abszisse ($E_F = 0$ meV) gegeben ist. Die Fermigeschwindigkeit v_F ergibt sich aus der Steigung der Ausgleichsgeraden gemäß:

$$(5.8) \quad \frac{\omega_1 - \omega_2}{k_1 - k_2} = v_F$$

sowie

$$(5.9) \quad k_F = \frac{\omega_0}{v_F} \quad .$$

Da die hier beobachtete Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F offensichtlich eine photoinduzierte Veränderung der Fermifläche darstellt, ergibt sich die Frage nach der Interpretation dieses Effektes. Wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben, führt eine Veränderung der Lochdotierung zu einer Änderung der Fermifläche, weswegen die durch optische Anregung erzeugte Verschiebung von k_F auch als effektive, photoinduzierte Veränderung der Dotierung interpretiert werden kann. Über diesen, als Photodotierung bezeichneten Effekt, wurde zudem schon in früheren Arbeiten über topologische Isolatoren und Eisen-basierten Supraleitern berichtet [105-107].

Unter Verwendung des in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen YRZ-Modells, welches quantitativ die elektronische Struktur der Fermifläche von Bi2212 beschreibt, wurden die, nach oben beschriebener Methode, ermittelten Verschiebungen in k_F in äquivalente Änderungen der Lochdotierung umgerechnet. Also in die Anzahl der Löcher pro CuO_2 -Ebene

welche nötig wäre, um die gleiche Verschiebung in k_F hervorzurufen, wie sie im vorliegenden Experiment beobachtet wurde.

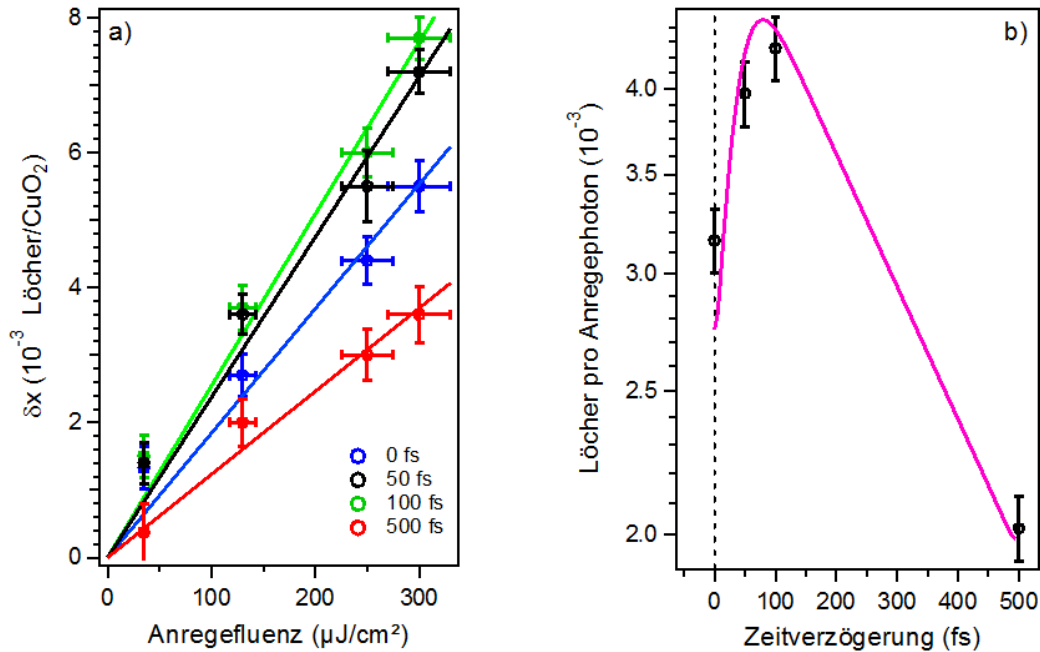


Abbildung 5-6 a) Effektive photoinduzierte Lochdotierung Δx als Funktion der Anregefluenz für verschiedene Anrege-Abfrage Verzögerungszeiten. Die durchgezogenen Linien sind lineare Ausgleichsgeraden anhand deren Steigung die Anzahl der induzierten Löcher pro Anregephoton für die betrachteten Zeiten bestimmt wurden, welche in b) dargestellt sind. Die Analyse basiert auf der in Abbildung 5-4 e)-h) gezeigten, zeitabhängigen Änderung in k_F , welche mittels des YRZ-Modells (Abschnitt 5.3.1) in eine äquivalente Lochdotierung in Löcher pro CuO₂-Ebene umgerechnet wurden (siehe Text). Die pinke Linie in b) dient zur Führung des Auges. Sie besteht aus einem einfachen exponentiellen Zerfall, welcher mit der Kreuzkorrelation des An- und Abregepulses von 100 fs gefaltet wurde. Die Fehlerbalken stammen von den jeweiligen Anpassungen der linearen Ausgleichsgeraden.

Abbildung 5-6 a) zeigt die effektive, photoinduzierte Lochdotierung Δx als Funktion der Anregefluenz für die hier betrachteten Verzögerungszeiten zwischen An- und Abfragepuls. Für alle Verzögerungszeiten ist ein linearer Anstieg in der Anzahl der erzeugten Löcher mit größer werdender Fluenz zu erkennen. Für jede Verzögerungszeit wurde anhand der Datenpunkte jeweils eine lineare Ausgleichsgerade bestimmt, wobei die offensichtliche

Annahme gemacht worden ist, dass bei Abwesenheit einer Anregung auch keine Photodotierung beobachtet werden kann, die Geraden folglich durch den Ursprung verlaufen müssen. Aus den Steigungen dieser linearen Ausgleichsgeraden können im Weiteren die Anzahl der photoinduzierten Löcher pro Photon des Anregepulses bestimmt werden, was in Abbildung 5-6 b) als Funktion der Zeit dargestellt ist. Es wird deutlich, dass sich die maximale Photodotierung bei einer Verzögerungszeit von 50-100 fs nach dem Anregepuls einstellt, wodurch sich dieser Effekt von der in Abschnitt 5.2.1 beschriebenen Änderung der effektiven Masse unterscheidet. Zudem deutet dieses Zeitverhalten darauf hin, dass Anregungen von Sekundärelektronen, in welche die initial angeregten Elektronen zerfallen, für die Verschiebung von k_F verantwortlich sind [108]. Dies erscheint auch im Hinblick auf die Relaxationszeit des Effektes innerhalb von einer Picosekunde plausibel, da sich auf dieser Zeitskala die Kopplung von Elektronen an Phononen weiter ausbilden kann [25, 103].

Eine mögliche Erklärung hierfür liegt in der in den Kupraten bekannten Elektron-Loch Asymmetrie [109], welche mit einer nicht-konstanten Zustandsdichte in der Nähe des Ferminiveaus einhergeht. Die dadurch resultierende unterschiedliche Abschirmung von Elektronen und Löcher verursacht eine effektive Lochpopulation, auf welche das System mit einer Verschiebung des chemischen Potentials reagiert um so die Ladungsträgerneutralität zu erhalten. Dieses äußert sich in Form einer Verschiebung von k_F , was für den vereinfachten Fall eines freien Elektronengases illustrativ in Abbildung 5-7 dargestellt ist.

Darüber hinaus könnte auch eine thermische Ausdehnung des Gitters aufgrund der durch den Anregepuls im System deponierten Energie als Ursache für die Veränderung in k_F vermutet werden. Hierzu müssten sich jedoch die angeregten Gitterschwingungen in lateraler Richtung über den gesamten abgefragten Bereich der Probe ausgebreitet haben. Schätzt man dafür die Schallgeschwindigkeit innerhalb des Materials mit etwa 1000 m/s ab [110] und geht von einer Größe des abgefragten Bereiches auf der Probe von ca. 50 μm aus, so ergeben sich hierfür Zeiten welche in der Größenordnung von einigen Nanosekunden und damit um ein Vielfaches oberhalb der Zeitskalen des diskutierten Effektes von einigen hundert Femtosekunden liegen. Somit kann eine durch die optische Anregung verursachte thermische Ausdehnung als Ursache für den beobachteten Effekt ausgeschlossen werden.

Wie aus der obigen Beschreibung des Experimentes hervorgeht, wurde die Verschiebung von k_F bis hierhin nur in Richtung der nodalen Linie diskutiert. In Bezug auf die angeführte Interpretation als effektive Änderung der Dotierung, stellt sich die offensichtliche Frage nach

dieser photoinduzierten Verschiebung von k_F bei anderen Impulsen im reziproken Raum und ob diese Änderungen zudem mit der elektronischen Struktur einer anderen chemischen Dotierung konsistent sind. Diese Punkte werden in folgendem Abschnitt behandelt.

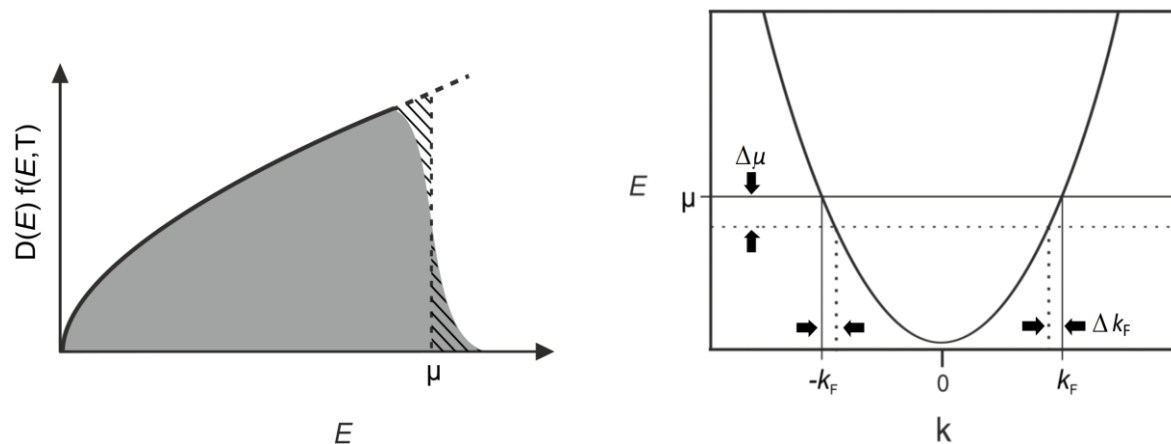


Abbildung 5-7 Schematische Darstellung einer photoinduzierten Verschiebung von k_F am Beispiel des freien Elektronengases. a) Die graue Fläche stellt die Dichte der besetzten Einteilchenzustände bei einer endlichen Temperatur dar. Aufgrund einer nicht-konstanten Zustandsdichte führt eine (in diesem Beispiel thermische) Anregung des Systems zu einer asymmetrischen Verteilung der Elektronen und Löcher um $\mu(T=0) = E_F$ (dargestellt anhand der schraffierten Flächen), worauf das System mit einer Verschiebung des chemischen Potentials $\mu(T)$ reagiert, um die Ladungsträgerneutralität beizubehalten. Wie in b) illustrativ anhand der Dispersion des freien Elektronengases dargestellt, hat die Verschiebung des chemischen Potentials ebenfalls eine effektive Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F zur Folge.

5.3 Photodotierung

Wie in vorangehendem Abschnitt ausführlich diskutiert, wurde bei den dort behandelten Experimenten zur zeitaufgelösten Photoemission entlang der nodalen Linie eine photoinduzierte Änderung des Fermiflächenvektors k_F beobachtet, welche als effektive Änderung der Dotierung des Materials interpretiert werden kann. Um diese Interpretation als Photodotierung weiter zu verifizieren wird in vorliegendem Abschnitt die Verschiebung von k_F auch bei anderen Impulsen im k -Raum untersucht und diese im Hinblick auf ein konsistentes Verhalten in Bezug auf die Interpretation als eine photoinduzierte Änderung der Dotierung diskutiert. Hierzu wird, wie auch schon in Abschnitt 5.2.2, das YRZ-Modell verwendet, welches die Fermiflächen von unterdotiertem Bi2212 beschreibt und im folgenden Abschnitt zunächst näher erläutert wird. Durch den Vergleich mit den Vorhersagen dieses Modells wird im Anschluss daran der Frage nachgegangen, inwieweit der in Bezug auf den Fermiflächenvektor angeregte, pumpinduzierte Zustand der elektronischen Struktur einem solchen entspricht, wie er für eine andere chemische Dotierung zu erwarten wäre.

5.3.1 Das YRZ-Modell

Nachwievor stellt die unterdotierte Seite des Phasendiagramms der Kuprate aufgrund der Vielzahl ihrer ungewöhnlichen Eigenschaften, wie etwa das Auftreten der Pseudoenergielücke oder dem nicht-Fermi-Flüssigkeits-artigen Verhalten oberhalb T^* , einen zentralen Gesichtspunkt in Bezug auf das Verständnis der Hochtemperatursupraleitung dar. Das 2006 entwickelte YRZ-Modell (benannt nach den Anfangsbuchstaben seiner Erfinder K. Yang, T. Rice und F. Zhang) [111], welches eine phänomenologische Theorie der „Pseudogap“-Phase in den Kupraten formuliert, konnte diesbezüglich einige beachtliche Erfolge erzielen. Es basiert auf dem von Anderson vorgeschlagenen Modell der resonanten Valenzbindung (RVB), nachdem die Spins zweier Elektronen aufgrund der antiferromagnetischen Wechselwirkung jeweils ein maximal verschränktes Spin-Singulett formen, welche in ihrer Gesamtheit wie eine Spinflüssigkeit betrachtet werden können [112]. Anstatt der Bildung einer festen Anordnung der Singulets führen hierbei starke Quantenfluktuationen dazu, dass sich der Grundzustand der Spinflüssigkeit als Superposition aller möglichen Singulett-Konfigurationen ergibt. Da in vorliegender Arbeit zum Zwecke des Vergleichs sowie der Interpretation der experimentellen Daten das YRZ-Modell verwendet

wurde, werden im Folgenden einige der relevanten elektronischen Eigenschaften, welche aus dem Modell resultieren, näher erläutert.

Der Ansatz des YRZ-Modells besteht in einer Selbstenergie beschrieben durch den Term $\Delta_{pg}^2(\vec{k}, x)/\omega + \epsilon_k^0(x)$ und dem daraus resultierenden kohärente Teil der Greenschen Funktion für eine dotierte RVB Spinflüssigkeit:

$$(5.10) \quad G(\vec{k}, \omega, x) = \frac{g_t(x)}{\omega - \epsilon_k(x) - \frac{\Delta_{pg}^2(\vec{k}, x)}{\omega + \epsilon_k^0(x)}}$$

Hierbei ist $g_t(x) = \frac{2x}{1+x}$ der von der Dotierung x abhängige Gutzwiller-Faktor, durch welche das Verbot der Doppelbesetzung eines Gitterplatzes im Falle einer sehr großen Coulomb-Abstoßung U (Hubbard Modell) berücksichtigt wird. Δ_{pg} beschreibt die d-wellenartige Pseudoenergielücke und ist gegeben durch:

$$(5.11) \quad \Delta_{pg}(\vec{k}, x) = \Delta_{pg}^0(x) [\cos(k_x a) - \cos(k_y a)]$$

mit

$$(5.12) \quad \Delta_{pg}^0(x) = 3t_0(0,2 - x)$$

und dem Gitterparameter a , sowie dem konstanten Sprungparameter t_0 (Hubbard Modell). ϵ_k und ϵ_k^0 bezeichnen zwei unterschiedliche Dispersionen:

$$(5.13) \quad \epsilon_k^0(\vec{k}, x) = -2t(x) [\cos(k_x a) - \cos(k_y a)]$$

$$(5.14) \quad \epsilon_k(\vec{k}, x) = \epsilon_k^0(\vec{k}, x) - 4t'(x) \cos(k_x a) \cos(k_y a) - 2t''(x) [\cos(2k_x a) + \cos(2k_y a)] - \mu_p(x)$$

Die Nullstellen von (5.13) ergeben hierbei die sogenannte antiferromagnetische Zonengrenze (Abbildung 5-8) während (5.14) die renormalisierte Elektronendispersion beschreibt, wobei hierfür die elektronischen Übergänge bis zu den dritt-nächsten Nachbarn berücksichtigt wurden:

$$(5.15) \quad t(x) = g_t(x)t_0 + \frac{3}{8}g_s(x)J\chi$$

$$(5.16) \quad t'(x) = -g_t(x) * 0,3t_0$$

$$(5.17) \quad t''(x) = g_t(x) * 0,2t_0$$

Mit dem weiteren Gutzwiller-Faktor $g_s(x) = \frac{4}{(1+x)^2}$, der Austauschwechselwirkung J und der Spin-Suszeptibilität χ .

Aufbauend auf dem Ansatz (5.10) argumentiert das YRZ-Modell, dass unterhalb einer kritischen Dotierung x_{crit} (hier 0,2 wie aus (5.12) hervorgeht) $G(\vec{k}, \omega = 0, x)$ durch die gleichzeitige Existenz einer das Luttinger-Theorem erfüllende Fläche von Nullstellen, sowie einer Lochtasche bildenden Fermifläche charakterisiert ist. Erstere ist identisch mit der antiferromagnetischen Brillouin-Zonen-Grenze an welcher die Greensche Funktion einen Vorzeichenwechsel aufweist, wobei Letzteres durch die Polstellen von $G(\vec{k}, \omega = 0, x)$ gekennzeichnet ist. Wie aus Abbildung 5-8 hervorgeht, vergrößert sich die durch die Lochtaschen eingeschlossene Fläche für größer werdendes x kontinuierlich und ähnelt ab dem kritischen Wert x_{crit} einer normalen Tight-Binding-Fläche, so wie sie in Abbildung 2-9 gezeigt ist.

Eine wichtige Besonderheit ist hierbei die ungleichmäßige Verteilung des spektralen Gewichts, welche um die Lochtasche bildende Kontur sehr stark variiert und in Abbildung 5-9 dargestellt ist. Während dieses an dem weiter innerhalb der Brillouin-Zone liegenden Rand der Kontur maximal ist, nimmt es für die Seite, welche sehr nahe an der Luttinger-Fläche der Nullstellen liegt, schlagartig ab und ist Null entlang der nodalen Richtung $(0,0) - (\pi,\pi)$. Entlang dieser Richtung existiert somit nur ein Vorzeichenwechsel in $G(\vec{k}, \omega = 0, x)$ an der innen liegenden Seite der Tasche. Die Tatsache, dass das spektrale Gewicht an dem außen liegenden Rand der Kontur verschwindend gering ist, liefert zudem eine Erklärung dafür, dass diese Seite bisher nicht in APRES Experimenten (3.1) beobachtet werden konnte. Stattdessen beobachtet man das bereits erwähnte Auftreten von sogenannten Fermi-Bögen (Abbildung 2-11), welche nicht geschlossene Konturen mit von der Dotierung abhängigen Ausmaßen darstellen. Die Erfolge des YRZ-Modells sind nicht zuletzt dadurch begründet, dass die

Ränder der in ARPES Experimenten beobachteten Fermi-Bögen gut mit den Stellen übereinstimmen, an denen laut dem YRZ-Modell das spektrale Gewicht schlagartig abnimmt. Weitere Übereinstimmungen des YRZ-Modells sowie weiterführende und detailliertere Beschreibungen sind zum Beispiel in [113-119] zu finden.

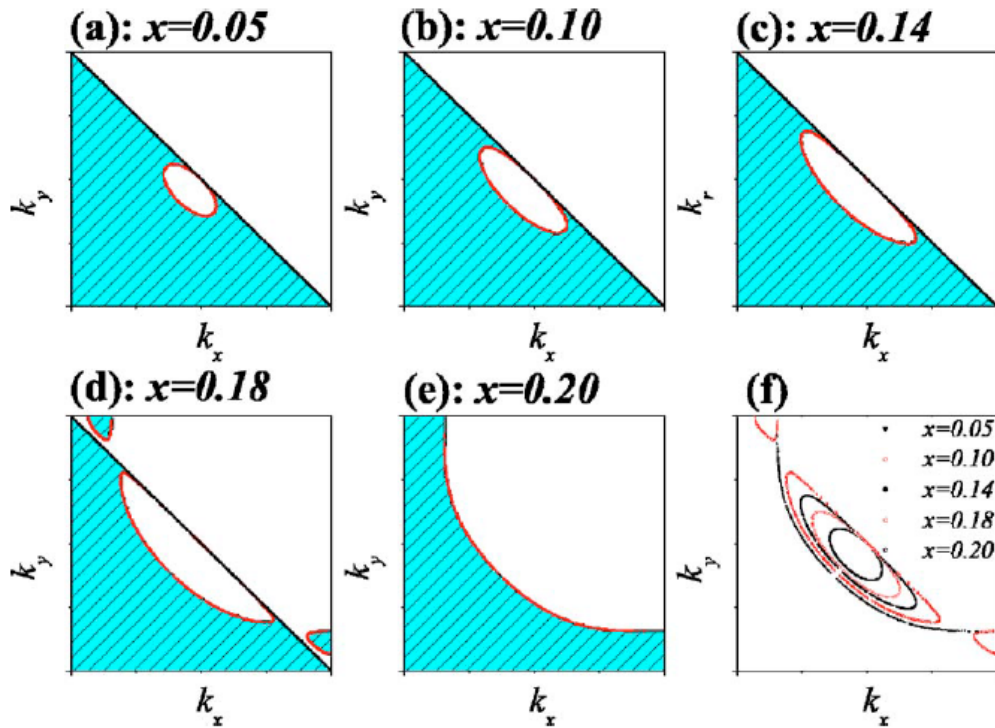


Abbildung 5-8 Konturen von $G(\vec{k}, \omega = 0, x)$ für von a) bis e) ansteigendes x , dargestellt in einem Viertel der ersten Brillouin-Zone. In der schraffierten, blauen Fläche ist $G(\vec{k}, \omega = 0, x) > 0$ und erfüllt das Luttinger-Theorem, wobei die diagonale Verbindung entlang der antiferromagnetischen Zonengrenze von $(\pi, 0) - (0, \pi)$ die Nullstellen zeigt. Die durch rote Linien dargestellten Lochtaschen ergeben sich durch die Polstellen der Greenschen Funktion. Das Feld f) zeigt die Entwicklung der durch die Polstellen gegebenen Kontur für verschiedene x . [111]

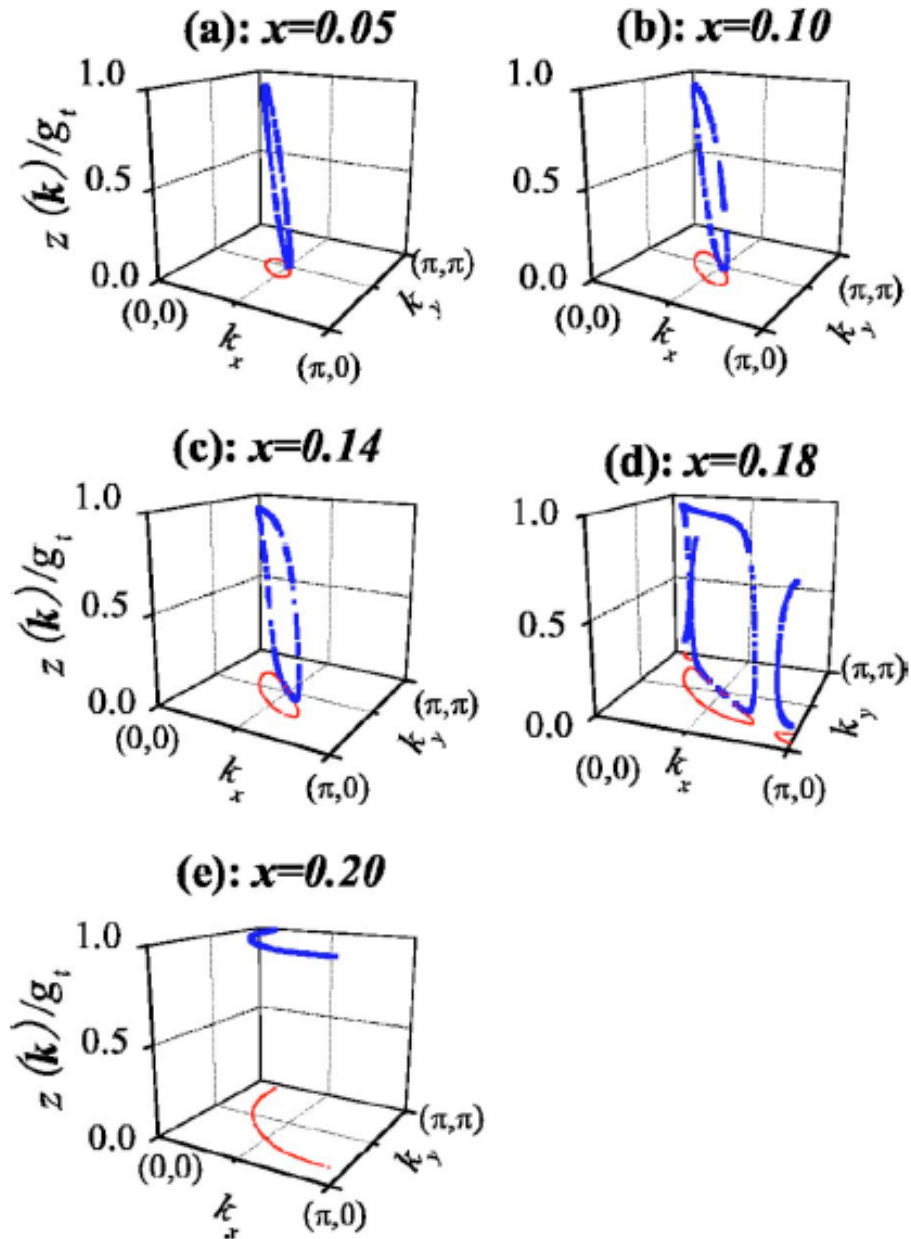


Abbildung 5-9 Verteilung des spektralen Gewichts um die Lochtasche bildende Kontur in der normalen „Pseudogap“-Phase. [111].

5.3.2 Impuls- und dotierungsabhängige Verschiebung von k_F

Für einen Vergleich der Fermiflächen des angeregten, transienten Zustands mit der einer anderen chemischen Dotierung ist die Tatsache von Nutzen, dass der Abstand der Fermiflächen zweier Proben mit unterschiedlicher chemischer Dotierung nicht impulsunabhängig ist, sondern mit größer werdendem Impuls anwächst (Abbildung 5-10). Wie stark dieser Unterschied in Δk_F für eine gegebene Richtung ausgeprägt ist, hängt zudem stark von den Dotierungen ab, welche miteinander verglichen werden. Während Unterschiede bezüglich einer Verschiebung von k_F in dem Bereich der optimalen Dotierung für verschiedene Fermiflächenwinkel kaum vorhanden sind, ist dieser bei stärker unterdotierten Proben wesentlich deutlicher ausgeprägt.

Abbildung 5-10 illustriert die theoretische Impuls- und Dotierungsabhängigkeit der Verschiebung von k_F anhand der durch das YRZ-Model berechneten Fermiflächen von drei verschiedenen chemischen Dotierungen. Während ein Unterschied in Δk_F zwischen den Dotierungen $x = 0,16$ und $x = 0,12$ erst bei verhältnismäßig großen Fermiflächenwinkeln deutlich wird, ist dieser beim Vergleich zwischen $x = 0,12$ und $x = 0,086$ schon bei kleineren Winkeln wesentlich deutlicher ausgeprägt. Eine pumpinduzierte Änderung im Sinne der beschriebenen Photodotierung müsste folglich ebenfalls diese Charakteristika der Impuls- und Dotierungsabhängigkeit aufweisen, was in folgendem Abschnitt untersucht wird.

Um die in Abschnitt 5.2.2 diskutierte Änderung des Fermiflächenvektors k_F auch bei größeren Impulsen innerhalb des reziproken Raumes zu untersuchen, wurden somit im Rahmen dieser Arbeit weitere Experimente zur zeitaufgelösten Photoemissionsspektroskopie an Bi2212 durchgeführt. Unter Verwendung des pTOF-Spektrometers (Abschnitt 4.2.2) wurde abermals optimal dotiertes Bi2212 mit einer kritischen Temperatur von $T_c = 91$ K sowie unterdotiertes Bi2212 mit einer kritischen Temperatur von $T_c = 50$ K untersucht (im Folgenden mit OP91K und UD50K bezeichnet). Bis auf die Tatsache, dass die UD50K Proben bei einer Temperatur von $\sim 60 \pm 5$ K gespalten wurden, und nicht wie die OP91K Proben bei $\sim 100 \pm 5$ K, entsprachen die experimentellen Parameter bei den hier diskutierten Messungen denen, welche in Abschnitt 5.2 beschrieben wurden.

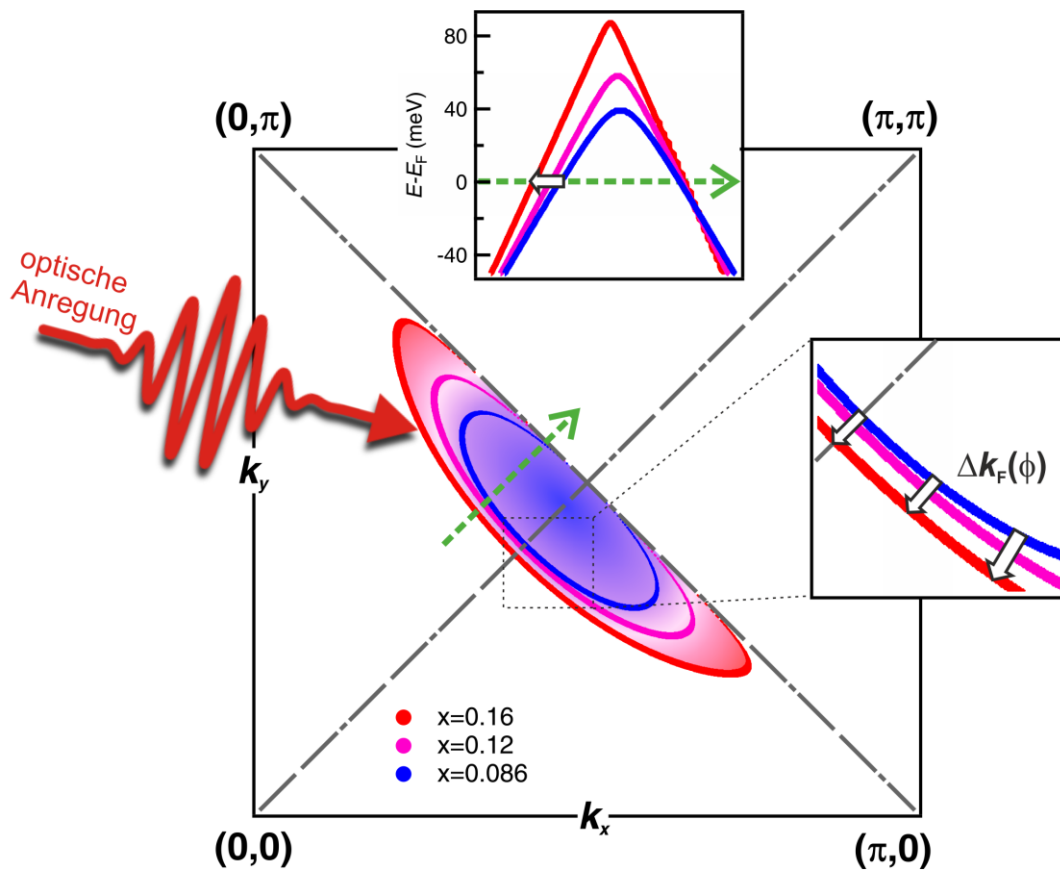


Abbildung 5-10 Schematische Darstellung der Impuls- und Dotierungsabhängigkeit von Δk_F . Gezeigt sind die mit Hilfe des YRZ-Modells berechneten Fermiflächen für die drei verschiedenen Dotierungen $x = 0,16$ (optimal dotiert, $T_c = 91$ K), $x = 0,12$ ($T_c = 79$ K) und $x = 0,086$ ($T_c = 50$ K). Es wird deutlich, dass Δk_F mit größer werdendem Impuls deutlich zunimmt, wobei die Größe dieses Effektes von den betrachteten Dotierungen abhängt. Während die impulsabhängige Zunahme von Δk_F im Bereich der optimalen Dotierung relativ gering ist, fällt diese im Falle stärkerer Unterdotierung wesentlich deutlicher aus. Das eingelassene Bild am oberen Rand zeigt den Verlauf der Dispersion entlang des grünen Pfeils für die drei dargestellten Dotierungen. Der Farbverlauf innerhalb der Fermiflächen soll schematisch die Vorstellung der durch die optische Anregung induzierten Photodotierung verdeutlichen. Durch den Einfluss des Anregepulses wird eine impulsabhängige Verschiebung von k_F induziert, welche konsistent mit einer Verschiebung ist, wie man bei einem direkten Vergleich mit einer anderen chemischen Dotierung erwarten würde und wie durch die offenen Pfeile illustriert wird.

Abbildung 5-11 a) und b) illustriert die durch diese Messungen zugänglichen Bereiche der ersten Brillouin-Zone von Bi2212 anhand von Schnitten durch die aufgenommenen Datensätze bei einer Energie von $E = E_F$ für die hier untersuchten Proben (OP91K und UD50K) vor dem Zeitpunkt der optischen Anregung. Alle der dort gezeigten Ovale stammen von unabhängigen Einzelmessungen, welche jeweils an unterschiedlichen Proben desselben Kristalls der jeweiligen Dotierung durchgeführt worden sind. Um die impulsabhängige Verschiebung von k_F zu ermitteln, wurden zunächst die Dispersionen entlang der durch die gestrichelten Quadrate angedeuteten Richtungen bestimmt, wobei jeweils über die Intensitäten entlang der Breite der Quadrate gemittelt wurde. Die einzelnen die Dispersionen ergebenden Datenpunkte wurden anhand der jeweiligen MDCs bestimmt, indem für jede MDC der Schwerpunkt der Verteilung aller Datenpunkte ermittelt wurde, welche einen höheren Intensitätswert als 50% des Maximalwertes aufwiesen. Dies ist exemplarisch in Abbildung 5-11 c) dargestellt. An die so gefundenen Dispersionen wurden lineare Ausgleichsgeraden angepasst und k_F anhand des Durchstoßpunktes dieser Geraden mit $E = E_F$ ermittelt. Die photoinduzierte Änderung des Fermiflächenvektors Δk_F ergibt sich folglich aus der Differenz zwischen dem für einen bestimmten Zeitpunkt nach der optischen Anregung ermittelten Wert für k_F und dem Wert vor der optischen Anregung.

Abbildung 5-12 zeigt die so ermittelten photoinduzierten Verschiebungen von k_F als Funktion der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfragepuls für drei verschiedene Fermiflächenwinkel. Zunächst wird deutlich, dass die zeitliche Abhängigkeit des Effektes für alle hier betrachteten Winkel ein ähnliches Verhalten zeigt. Wie schon in Abschnitt 5.2.2 ausführlich diskutiert, erreicht die Verschiebung von k_F bei $\sim 50 - 100$ fs nach der Anregung ihr Maximum und kehrt dann innerhalb einer Pikosekunde auf ihren Ausgangswert zurück, weswegen die Elektron-Phonon Wechselwirkung auch für die hier betrachteten Fermiflächenwinkeln als Relaxationskanal plausibel erscheint.

Im Gegensatz dazu zeigt die Impulsabhängigkeit der photoinduzierten Verschiebung von k_F einen deutlichen Unterschied für die beiden hier betrachteten Dotierungen OP91K und UD50K. Während der Effekt im Falle der optimal dotierten Probe für alle betrachteten Fermiflächenwinkel keine deutlichen Änderungen innerhalb der Fehlerbalken aufweist, nimmt dieser für die unterdotierte Probe mit größer werdendem Fermiflächenwinkel stark zu. So ist bei $\phi = 34^\circ$ die Verschiebung von k_F für die unterdotierte Probe ca. doppelt so groß wie im Falle der optimalen Dotierung, während Δk_F entlang der nodalen Richtung ($\phi = 45^\circ$) für beide Proben vergleichbar ist (**Abbildung 5-10**). Ebenfalls deutlich wird die Impulsabhän-

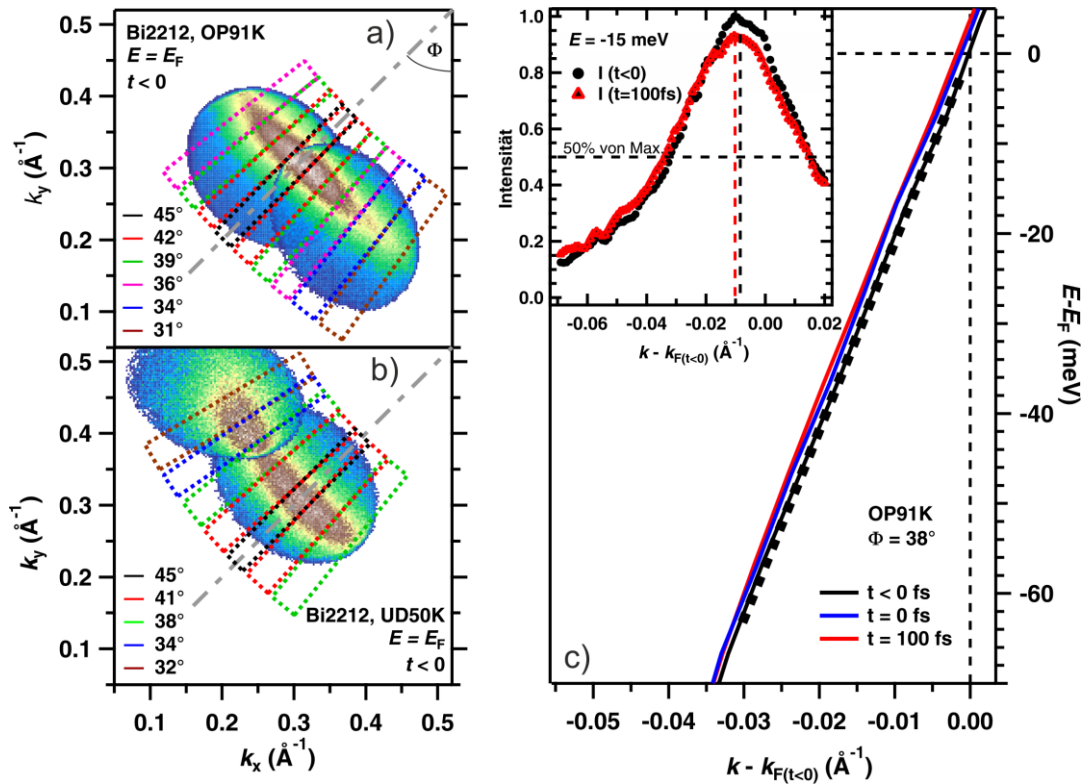


Abbildung 5-11 a)-b) Schnitte durch die mit Hilfe des pTOF aufgenommenen Datensätze bei konstanter Energie E_F in einem Ausschnitt der ersten Brillouin-Zone für die hier untersuchten Proben OP91K und UD50K vor der optischen Anregung. Die teilweise überlappenden Ovale stammen von untereinander unabhängigen Messungen. Die gestrichelten Quadrate bei den verschiedenen Fermiflächenwinkeln illustrieren die Richtungen, entlang derer die Analyse bezüglich der Verschiebung in k_F durchgeführt worden ist. Die Breite der Quadrate deutet den Bereich an, über den für die Analyse der jeweiligen Richtung gemittelt wurde. Die diagonal verlaufende graue Linie entspricht der Richtung der nodalen Linie. c) Zeigt exemplarisch die aus den Daten ermittelten Dispersionen für den Fermiflächenwinkel $\phi = 38^\circ$ für drei ausgewählte Anrege-Abfrage Verzögerungen. Die Dispersionen wurden anhand der Maxima der MDCs entlang der in a) und b) gezeigten Schnitte ermittelt. Zur Bestimmung der Maxima der MDCs, wurde der Schwerpunkt der Verteilung aller Datenpunkte bestimmt, deren Intensität oberhalb von 50% des größten Wertes liegen. Dies ist exemplarisch in dem eingelassenen Feld dargestellt. An die so ermittelten Dispersionen wurden im Bereich $-70 \text{ meV} < E < E_F$ lineare Ausgleichsgeraden angepasst und die Position von k_F anhand der Schnittpunkte mit $E = E_F$ bestimmt.

gigkeit von Δk_F anhand Abbildung 5-13, welche die Verschiebung von k_F als Funktion der hier betrachteten Fermiflächenwinkel für die beiden untersuchten Dotierungen zeigt. Aufgrund der Tatsache, dass es sich bei dem hier diskutierten Effekt um sehr kleine Änderungen handelt, wurde für eine deutlichere Illustration der Mittelwert der Verschiebungen bei den Zeiten 50 und 100 fs gebildet, da ein Maximum aufgrund der Nähe zur Nachweisgrenze nicht eindeutig bestimmt werden konnte.

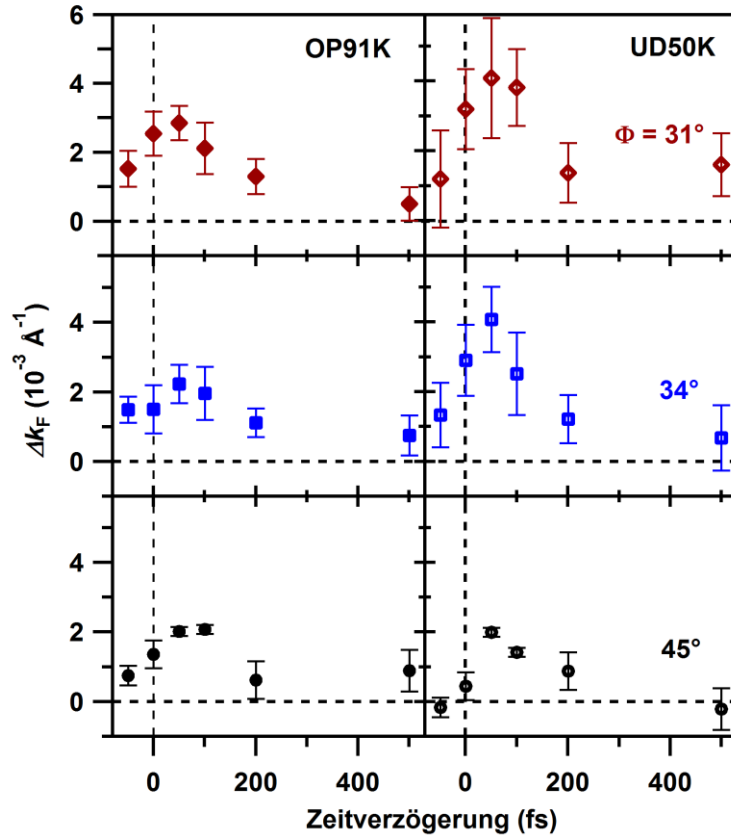


Abbildung 5-12 Induzierte Änderung des Fermiflächenvektors als Funktion der Anrege-Abfrage Zeitverzögerung bei drei verschiedenen Fermiflächenwinkeln für die zwei untersuchten Dotierungen (OP91K und UD50K). Die zu den Winkeln zugehörigen Schnitte sind in Abbildung 5-11 a) und b) dargestellt. Die Fehlerbalken ergeben sich durch die Standardabweichung der an die Dispersionen angepassten Ausgleichsgeraden. Die gezeigten Datenpunkte entsprechen einer absorbierten Anregefluenz von $F \sim 300 \mu\text{J}/\text{cm}^2$.¹

¹ Um die absorbierten Anregefluenzen für die jeweiligen Messungen zu berechnen wurden die in Abbildung 4-5 dargestellten Fresnelkoeffizienten verwendet. Für die Messung bei größeren Impulsen an der UD50K Probe betrug die absorbierte Fluenz $\sim 560 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Um eine Vergleichbarkeit herzustellen wurden die ermittelten Werte für Δk_F entsprechend des in Abschnitt 5.2.2 nachgewiesenen linearen Zusammenhangs auf $\sim 300 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ skaliert.

Die, wie in Abschnitt 5.3 dargelegt, im Falle einer Photodotierung zu erwartende Impulsabhängigkeit der photoinduzierten Änderung von k_F konnte somit nur eindeutig für die hier untersuchte unterdotierte Probe (UD50K) gezeigt werden. Um dies daher auch für den optimal dotierten Fall auf Konsistenz mit der Interpretation einer photoinduzierten Änderung der Dotierung zu überprüfen, werden die ermittelten Daten für Δk_F in folgendem Abschnitt quantitativ mit den Berechnungen des YRZ-Modells verglichen.

5.3.3 Vergleich mit dem YRZ-Modell

Um die ermittelten Werte für die pumpinduzierte Verschiebung von k_F quantitativ mit dem YRZ-Modell zu vergleichen, wurden zunächst die für die Verzögerungszeiten 50 und 100 fs bestimmten Mittelwerte von Δk_F für jeden betrachteten Fermiflächenwinkel in eine äquivalente Veränderung der Lochdotierung umgerechnet. Der hierzu notwendige Zusammenhang zwischen der Größe der Verschiebung von k_F und der entsprechenden Anzahl der Löcher pro Kupferoxidebene innerhalb einer Einheitszelle wurde mit Hilfe des YRZ-Modells (Abschnitt 5.3.1) berechnet und ist in den eingelassenen Darstellungen in Abbildung 5-13 für ausgewählte Fermiflächenwinkel dargestellt. Wie bereits anhand Abbildung 5-10 erläutert, ist die erwartete Verschiebung des Fermiflächenvektors ausgehend von stärker unterdotierten Proben deutlich größer als im optimal dotierten Fall. Bereits bei kleinen Änderungen der Dotierung liefert die theoretische Vorhersage für die UD50K Probe eine klare Impulsabhängigkeit von Δk_F , während diese für eine optimal dotierte Probe wesentlich schwächer ausgeprägt ist. Weiterhin ist auffällig, dass im Falle der UD50K Probe zwar eine viel deutlichere Impulsabhängigkeit vorhanden ist, die absoluten Werte von Δk_F bei Änderung der Dotierung jedoch wesentlich geringer ausfallen als dies für die OP91K Probe der Fall ist.

Aufgrund dieser Tatsache ergeben sich auch deutliche Unterschiede für die gemittelten, photoinduzierten Änderungen der Lochdotierungen, welche auf oben beschriebene Weise anhand der Verschiebungen in k_F für jeden hier betrachteten Fermiflächenwinkel bestimmt wurden. Da bei allen hier betrachteten Fermiflächenwinkeln die größte Veränderung bei einer Verzögerungszeit im Bereich 50 - 100 fs zu beobachten ist, scheint die vereinfachende Annahme gerechtfertigt, dass eine wohldefinierte, transiente Fermifläche im angeregten Zustand existiert und diese mit der einer anderen chemischen Dotierung zu vergleichen. Somit ergibt sich für die über alle betrachteten Fermiflächenwinkel gemittelten induzierten Änderungen der Lochdotierung Werte von $\Delta x = 0,012$ ($\Delta T_c \approx 12,7$ K) für die UD50K und

$\Delta x = 0,0028$ ($\Delta T_c \approx 0,9$ K) für die OP91K Probe. Die für diese Werte berechneten, winkelabhängigen Verschiebungen von k_F sind als gestrichelte Linien in Abbildung 5-13 dargestellt. Wie bei dem Vergleich dieses theoretischen Verlaufes mit den gemessenen Datenpunkten deutlich wird, sind die durch die optische Anregung induzierten Veränderungen in der elektronischen Struktur in Bezug auf die Fermifläche konsistent mit der Interpretation als Photodotierung. Auch im Falle der optimal dotierten Probe, entspricht die Abwesenheit einer deutlichen Impulsabhängigkeit betreffend der Verschiebung in k_F somit den theoretischen Vorhersagen des YRZ-Modells und ist ebenfalls konsistent mit einer effektiven Änderung der Dotierung. Ungeachtet der Tatsache, dass aufgrund der Größenordnung der hier diskutierten Änderungen im Bereich von 10^{-3}Å^{-1} eine belastbare Aussage in Bezug auf die tatsächliche quantitative Anzahl der induzierten Löcher und die damit einhergehende Änderung der kritischen Temperatur im transienten Zustand erschwert wird, soll abschließend darauf hingewiesen werden, dass eine kontrollierte Modifikation der effektiven Dotierung von großem potentiellen Interesse für zukünftige optoelektronische Bauteile ist. Eine photoinduzierte Änderung der transienten Dotierung könnte beispielsweise bei geeigneter Wahl der Ausgangsparameter zu einem Phasenübergang des Materials führen. Ein so erzeugter, auf einer Zeitskala von Femtosekunden ablaufender Übergang zwischen einer isolierenden und metallischen oder sogar supraleitenden Phase könnte beispielsweise die Grundlage eines ultraschnellen Schalters bilden, welcher mit einer Umschaltfrequenz von theoretisch mehreren hundert Gigahertz arbeiten könnte.

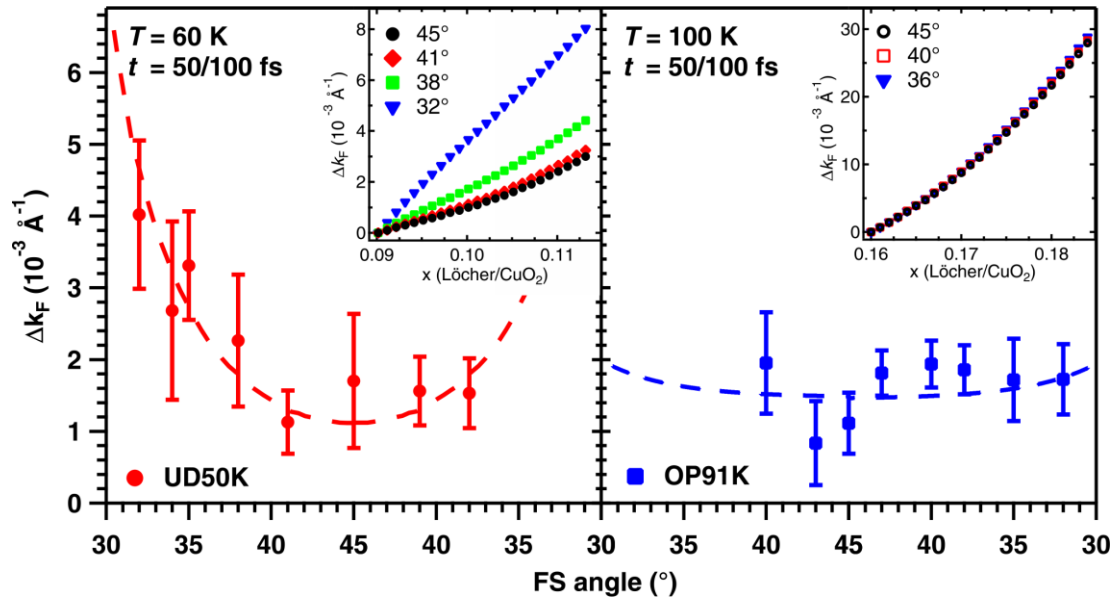


Abbildung 5-13 Mittelwerte der photoinduzierten Verschiebung von k_F bei den Anrege-Abfrage Verzögerungszeiten 50 und 100 fs als Funktion des Fermiflächenwinkels für die untersuchten Dotierungen UD50K und OP91K. Über von unterschiedlichen Messungen stammende Datenpunkte bei gleichen Winkeln wurde gemittelt. Die gestrichelten Linien stellen die theoretischen Vorhersagen dar, welche sich aus dem YRZ-Modell für die durchschnittliche photoinduzierte Änderung der Dotierung ergeben (siehe Text). Die eingelassenen Abbildungen zeigen die theoretische Veränderung von k_F als Funktion der Dotierung für verschiedene Fermiflächenwinkel. Ausgangspunkt ist jeweils die chemische Dotierung der gemessenen Probe (UD50K $\equiv x = 0,086$ und OP91K $\equiv x = 0,16$). Man beachte zudem die unterschiedlichen Skalen der Ordinaten.

5.4 Dynamik heißer Elektronen

Um die Dynamik der heißen Ladungsträger sowie den Einfluss der optischen Anregung durch den Laserpuls in der „Pseudogap“-Phase zu untersuchen, wurden weitere Experimente an optimal dotiertem Bi2212 durchgeführt. Hierzu wurden mit dem konventionellen TOF Spektrometer (Abschnitt 4.2.1) erneut Photoemissionspektren am nodalen Punkt bei einer Temperatur von $T = 100$ K für verschiedene absorbierte Anregefluenzen (315 , 165 , 105 und $35 \mu\text{J}/\text{cm}^2$) aufgenommen. Der untersuchte Verzögerungszeitraum zwischen Anrege- und Abfragepuls lag zwischen -300 und 3000 fs mit Schrittweiten von 20 bzw. 50 fs, wobei sämtliche hier nicht erwähnten Parameter denen in Abschnitt 5.2 entsprachen.

Abbildung 5-14 zeigt exemplarisch die trAPRES Intensität als Funktion der Energie sowie der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfragepuls bei einer absorbierten Fluenz von $315 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ in einer Falschfarbendarstellung.

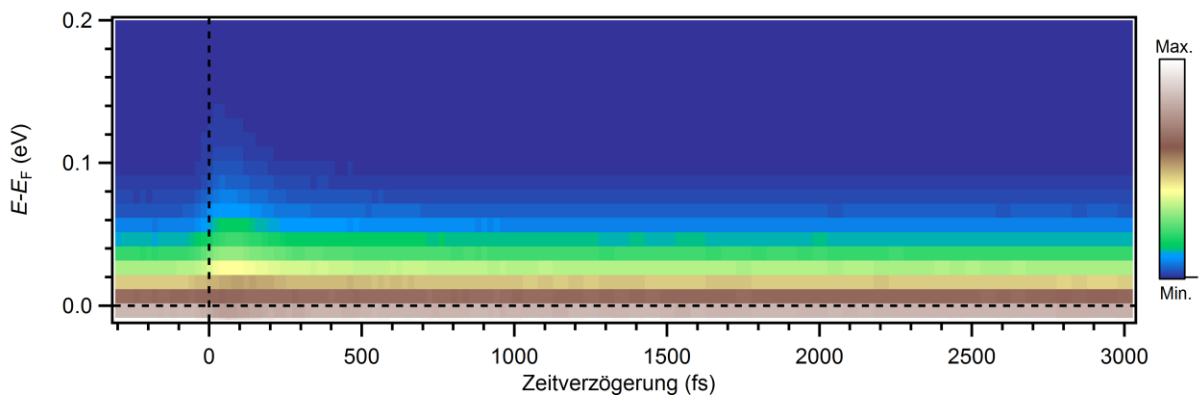


Abbildung 5-14 trARPES Intensität als Funktion der Bindungsenergie und Anrege-Abfrage Zeitverzögerung bei $F = 315 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ und einer Temperatur von $T = 100$ K an dem nodalen Punkt.

5.4.1 Charakterisierung der optischen Anregung

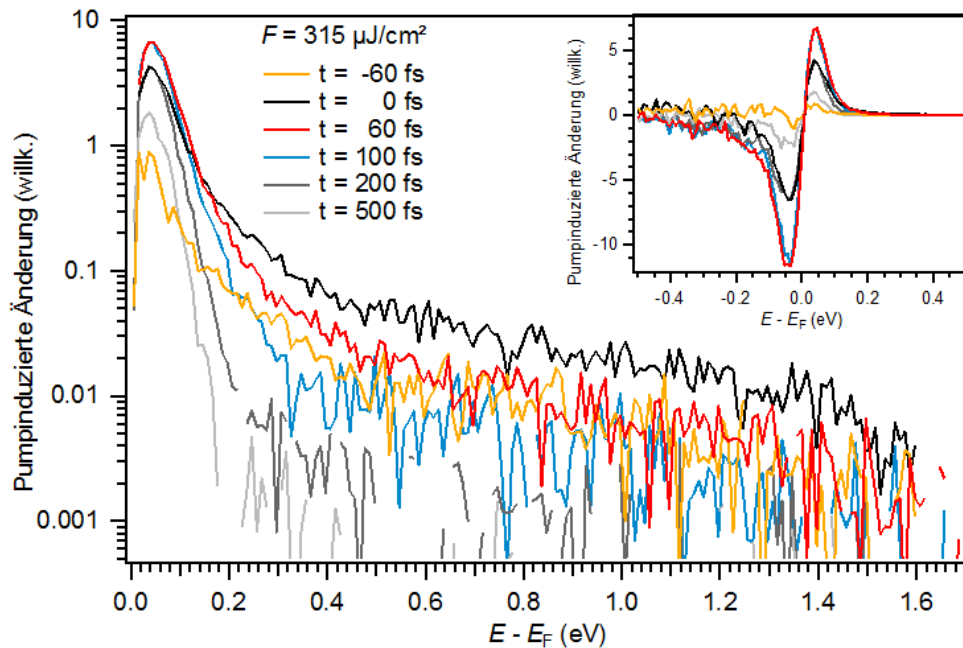


Abbildung 5-15 Zeitliche Entwicklung der photoinduzierten optischen Anregung der Elektronenverteilung nach Abzug des Gleichgewichtsspektrums für eine absorbierte Fluenz von $F = 315 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ bei einer Temperatur von 100 K auf logarithmischer und linearer (Einsatz) Skala.

Folgender Abschnitt untersucht die primäre Antwort des elektronischen Systems von Bi2212 auf die optische Anregung. Während sich frühere und aktuelle Arbeiten zur zeitaufgelösten Photoemissionsspektroskopie an Bi2212 hauptsächlich auf die Dynamik der supraleitenden Phase und bei Anregungen mittels relativ niedriger Anregungsfluens von $< 30 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ konzentrieren [19, 21, 26, 28, 29], untersucht vorliegende Arbeit die „Pseudogap“-Phase des Materials bei höheren Anregungsfluens von deutlich oberhalb $30 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Eine in diesem Anregungsregime nach wie vor ungeklärte Frage ist, inwieweit die Bestrahlung durch den Anregepuls sich allein in Dipolanregungen einzelner Elektronen äußert, welche von einem Anfangs- in einen Endzustand angeregt werden, oder ob das elektronische System kollektiv im Sinne einer transienten Polarisation reagiert, was zu einer Beeinflussung der Korrelationen führen kann, so wie es beispielsweise in Abschnitt 5.2.1 diskutiert wurde.

Um den Einfluss der optischen Anregung auf das elektronische System und die daraus resultierende Umverteilung zu untersuchen ist in Abbildung 5-15 die zeitliche Entwicklung

der photoinduzierten Elektronenverteilung dargestellt. Die größten Änderungen sind in einem Bereich von $\sim \pm 50$ meV um das Fermi-niveau auszumachen, wobei zudem heiße Ladungsträger bis zu der Photonenenergie des Anregepulses von $E - E_F \approx 1,5$ eV vorhanden. Diese deuten auf eine Dipolanregung hin und sind bis zu einer Verzögerungszeit von 100 – 200 fs zu beobachten, wobei keine Signatur eines wohldefinierten Zustandes auszumachen ist. Innerhalb des Energieintervalls $0,6 \text{ eV} < E - E_F < 1,5 \text{ eV}$ zeigen die Verläufe zudem ein zeitlich symmetrisches Verhalten in Bezug auf die Verteilung bei $t = 0$ fs. Diese Symmetrie legt nahe, dass die Lebenszeiten der angeregten Ladungsträger in diesem Energiebereich wesentlich kleiner als die Impulsdauer der Laserpulse sind und somit im Wesentlichen die Kreuzkorrelation zwischen Anrege- und Abfragepuls widergespiegelt wird. Durch das Kreuzen der Intensitätsverläufe für $t = 60$ fs und -60 fs bei einer Energie von $E - E_F \approx 0,6$ eV wird die erwähnte zeitliche Symmetrie unterhalb dieser Energie gebrochen, wodurch endliche Lebensdauern der angeregten Ladungsträger nachweisbar werden. Dies ist dadurch zu begründen, dass die transient erzeugten heißen Ladungsträger durch Elektron-Elektron Streuprozesse zu kleineren Energien hin umverteilt werden, wodurch weitere sekundäre Elektron-Loch Paare erzeugt werden. Dies liegt darin begründet, dass die Lebenszeiten der nach Thermalisierung strebenden Elektronen mit kleiner werdendem Abstand zum Fermi-niveau stetig größer werden, da der für die Streuung zur Verfügung stehende Phasenraum abnimmt. Dies erklärt zudem die Tatsache, dass die größten Änderungen in der Nähe des Fermi-niveaus auszumachen sind. Das Zunehmen der Lebenszeiten bei kleinen Energien wird zudem anhand eines weiteren Kreuzungspunktes bei einer Energie von $E - E_F \approx 0,15$ eV deutlich, an welcher sich die Intensitätsverläufe für $t = 0$ fs und $t = 60$ fs überschneiden und die maximalen photoinduzierten Änderungen folglich bei Zeiten von ~ 60 – 100 fs nach der optischen Anregung zu erkennen sind. Selbst nach Überschreitung des Intensitätsmaximums des Anregepulses führen somit die erwähnten Streuprozesse dazu, dass sich die Intensität heißer Ladungsträger in der Nähe des Fermi-niveaus weiter erhöht. Anschließend relaxiert das System, auch durch Ankopplung an weitere Freiheitsgrade wie zum Beispiel das phononische System weiter, und die Intensität nimmt mit größer werdenden Verzögerungszeiten ab, wobei eine wohldefinierte Elektronentemperatur anhand Abbildung 5-15 nicht vor 200 – 500 fs nach der Anregung auszumachen ist (zu erkennen an einem linearen Verlauf bei positiven Verzögerungszeiten auf der logarithmischen Skala).

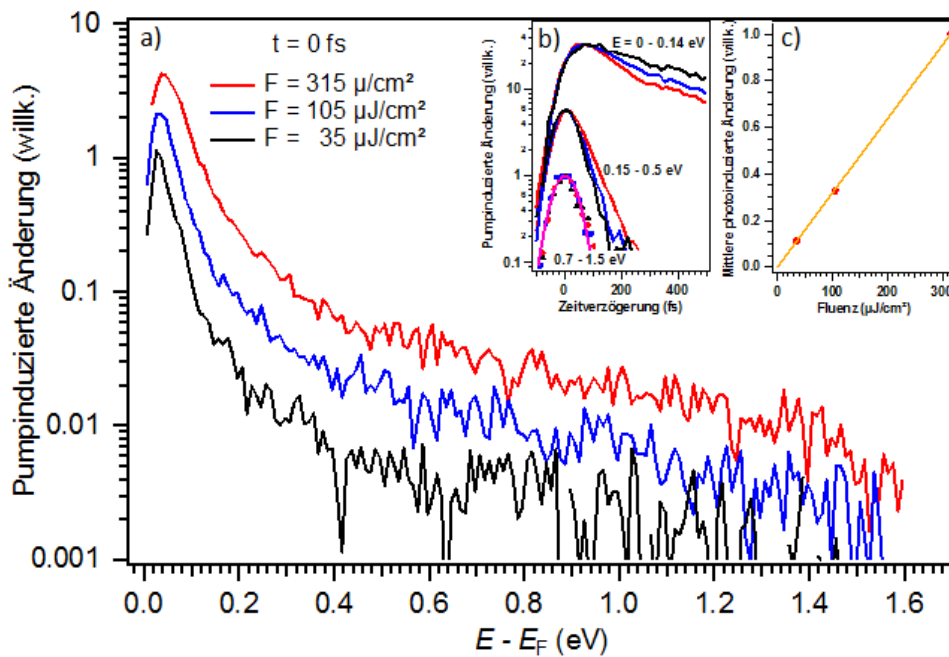


Abbildung 5-16 a) Vergleich der photoinduzierten Änderung bei einer Verzögerungszeit von $t = 0$ fs und einer Temperatur von $T = 100$ K für verschiedenen Fluenzen sowie der b) zeitliche Verlauf in drei charakteristischen Energiebereichen (Einsatz), welche zur besseren Unterscheidbarkeit gegeneinander verschoben wurden. Die pinke durchgezogene Linie entspricht einem Gaußprofil mit 100 fs Halbwertsbreite. c) Die im Energiebereich $0,7 \text{ eV} < E - E_F < 1,5 \text{ eV}$ gemittelte photoinduzierte Änderung als Funktion verschiedener Anregefluenzen. Die orangene Linie ist eine lineare Anpassung an die Datenpunkte.

Der Einsatz in Abbildung 5-15 zeigt die photoinduzierten Veränderungen auf einer linearen Skala für einen Bereich von $\pm 0,5$ eV um das Fermi Niveau. Die photoinduzierten Änderungen zeigen ein in Bezug auf den zeitlichen Verlauf antisymmetrisches Verhalten um das Fermi-niveau, wobei die maximale Änderung unterhalb des Fermi-niveaus deutlich größer ist als oberhalb. Dies lässt sich einerseits durch die nicht-konstante Zustandsdichte in diesem Material erklären und andererseits durch die Tatsache, dass der durch das TOF zugängliche Bereich aufgrund des endlichen Öffnungswinkels (Abschnitt 4.2.1) begrenzt ist und somit nicht den gesamten Energie- und Impulsbereich, in welchem eine Anregung von Elektronen bzw. Löchern stattfindet, erfasst. Zudem können auch unterschiedliche Matrixübergangselemente sowie Ladungsträger, welche aus anderen Bereichen der Brillouin-Zone in das Beobachtungsfenster hineinstreuen, die gemessenen Intensitäten beeinflussen.

Abbildung 5-16 a) zeigt die photoinduzierten Veränderungen bei einer Verzögerungszeit von $t = 0$ fs für verschiedene absorbierte Anregefluenzen. Für alle Fluenzen sind Intensitäten über den gesamten Bereich der Photonenenergie des Anregepulses von $h\nu = 1,5$ eV vorhanden. Abbildung 5-16 c) zeigt die einem Energiebereich von $0,7 \text{ eV} < E - E_F < 1,5 \text{ eV}$ gemittelten photoinduzierten Änderungen für die verschiedenen absorbierte Anregefluenzen, wobei der sich ergebende lineare Zusammenhang (orangene Linie) ein weiteres Indiz für die Dipolcharakteristik der photoinduzierten Änderung ist.

Abbildung 5-16 b) zeigt den zeitlichen und fluenzabhängigen Verlauf der gemittelten und normierten Intensitäten in den drei weiter oben diskutierten Energiebereichen. Wie bereits erwähnt, sind für den Bereich der höchsten Energien keine Lebenszeiten zu erkennen und der zeitliche Verlauf folgt für alle dargestellten Fluenzen der Kreuzkorrelation des Anrege- und Abfragepulses (rosa Linie in Abbildung 5-16). Darüber hinaus zeichnet sich bei kleiner werdenden Energien eine Fluenzabhängigkeit in Bezug auf die pumpinduzierten Änderungen in den dargestellten Bereichen ab. Während im Bereich $0,15 \text{ eV} < E - E_F < 0,5 \text{ eV}$ die schnellste Relaxation für die kleinste Fluenz auftritt, verhält sich dies im Bereich $0,7 \text{ eV} < E - E_F < 1,5 \text{ eV}$ entgegengesetzt und die kleinste Fluenz zeigt hier die langsamste Relaxation.

Neben den hier diskutierten Signaturen der transienten optischen Anregung, welche, wie erwähnt, auf eine Dipolcharakteristik hindeuten, zeigt der in Abschnitt 5.2.1 behandelte Effekt der photoinduzierten Änderung der effektiven Masse Signaturen einer, wie dort beschrieben, kollektiven Antwort des Systems, weswegen eine klare Zuordnung des Anregungsmechanismus nicht eindeutig geschlussfolgert werden kann und ein gleichzeitiges Vorhandensein beider erwähneter Mechanismen wahrscheinlicher ist.

Weiterhin zeigen die in Abbildung 5-16 b) dargestellten zeitlichen Verläufe ein komplexes, nichtmetallisches Verhalten des Materials nach der optischen Anregung, welcher Gegenstand der folgenden Abschnitte ist.

5.4.2 Energie- und fluenzabhängige Elektronendynamik

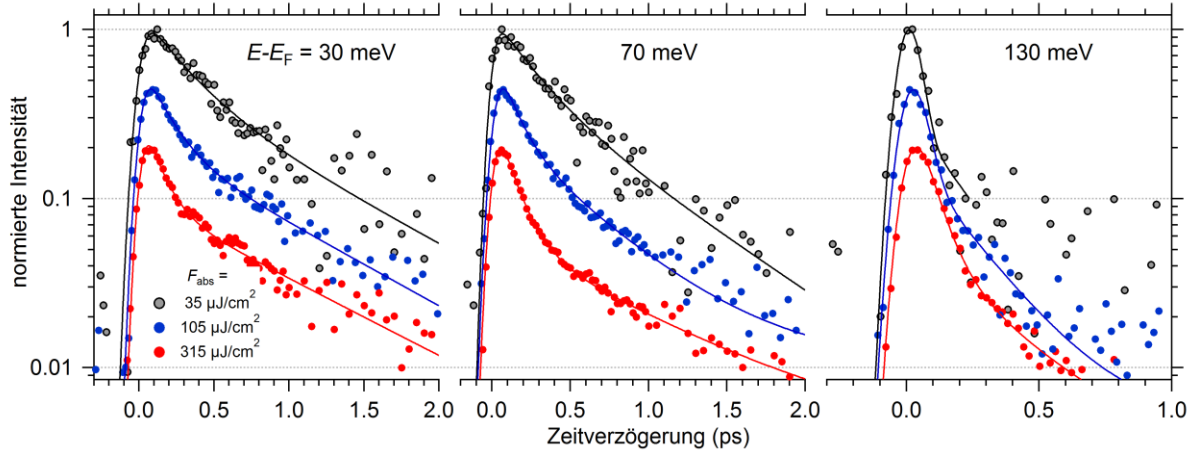


Abbildung 5-17 Innerhalb von 20 meV breiten Energiefenstern gemittelte und normierte Intensität der Photoemissionsspektren als Funktion der Anrege-Abfrage Zeitverzögerung für verschiedene Energien und absorbierte Fluenzen in logarithmischer Darstellung. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die jeweiligen Anpassungsfunktionen (siehe Text). Zur besseren Unterscheidbarkeit wurden die Kurven vertikal gegeneinander verschoben. Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Zeitskala bei $E-E_F = 130$ meV.

Um die energie- und fluenzabhängige Dynamik der heißen Ladungsträger zu analysieren, wurde zunächst über die Intensitäten der aufgenommenen Photoemissionsspektren innerhalb von Energiefenstern mit einer Breite von je 20 meV in einem Bereich von 10 – 140 meV oberhalb von E_F gemittelt. Der so bestimmte zeitliche Verlauf ist exemplarisch für drei verschiedene Bindungsenergien und Anregefluenzen in Abbildung 5-17 dargestellt. Zunächst ist deutlich zu erkennen, dass die Relaxation mit größer werdenden Energien wesentlich schneller stattfindet, als dies in der Nähe des Fermi-niveaus der Fall. Des Weiteren weist der zeitliche Verlauf der Intensitäten vor allem für die hohen Fluenzen von 315 und 105 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ zwei voneinander getrennte lineare Bereiche, unterschiedlicher Steigung auf, was aufgrund der logarithmischen Darstellung auf ein biexponentielles Relaxationsverhalten hindeutet. Um dies zu quantifizieren wurden die Daten mittels einer zweikomponentigen exponentiellen Funktion auf einem konstanten Untergrund B , entsprechend

$$(5.18) \quad I(t) = A_1 e^{-\frac{1}{\tau_1} t} + A_2 e^{-\frac{1}{\tau_2} t} + B$$

angepasst, welche zusätzlich mit einer Gaußkurve von ~ 100 fs Breite gefaltet wurde, was der durch die Kreuzkorrelation des Anrege- und Abfragepulses gegebenen Zeitauflösung entspricht. Hierbei sind A_1 und A_2 die zugehörigen Amplituden und τ_1 bzw. τ_2 die entsprechenden Zerfallskonstanten. Die resultierenden Anpassungen sind als durchgezogene Linien ebenfalls in Abbildung 5-17 dargestellt. Die auf die beschriebene Weise ermittelten Zerfallszeiten τ_1 und τ_2 sind in Abbildung 5-18 dargestellt. Da bei der niedrigsten Fluenz von $35 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ nur eine im Vergleich sehr geringe Anzahl heißer Ladungsträger erzeugt wird und sich die Intensität der Photoemissionsspektren somit, vor allem für größere Bindungsenergien, nur geringfügig vom Untergrund unterscheidet (Abbildung 5-17) konnte bei dieser Fluenz auf die beschriebene Weise mit Hilfe der Anpassungsfunktion kein zuverlässiger Wert für die Zerfallskonstante τ_2 gefunden werden. Betrachtet man hingegen den energieabhängigen Verlauf der für die Fluenzen $105 - 315 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ermittelten Werte für τ_2 , so ergibt sich für alle Fluenzen ein innerhalb der Fehlerbalken ähnlicher linearer Verlauf der ermittelten Werte, so dass die Annahme eines fluenzunabhängigen Verhaltens gerechtfertigt erscheint. Durch Anpassung einer linearen Ausgleichsgeraden an die ermittelten Werte für τ_2 konnte somit eine Vorhersage in Bezug auf eine Zeitkomponente τ_2 für die Fluenz $F = 35 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ gemacht werden (Abbildung 5-18). Durch Festlegung dieses Parameters in der Anpassungsfunktion (5.18) konnten daher auch für die Fluenz von $35 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ Werte für τ_1 ermittelt werden.

Während der in Abbildung 5-18 dargestellte Verlauf der langsamen Zeitkomponente τ_2 , wie erwähnt, weitestgehend fluenzunabhängig verläuft, zeigt τ_1 deutliche Änderungen bei unterschiedlichen Anregungsdichten. Diese treten in Form eines Sprunges zu kleineren Zerfallszeiten auf, welcher innerhalb eines energetischen Bereiches von $E - E_F \approx 70 - 90$ meV und somit im Bereich der in dieser Arbeit schon mehrfach erwähnten „Kink“-Energie liegt (Abschnitt 5.2). Zudem ist deutlich zu erkennen, dass dieser Sprung von τ_1 bei geringer werdender Fluenz wesentlich stärker ausprägt ist, und sich mit steigender Fluenz zunehmend verbreitert. Während beispielsweise die Werte für τ_1 bei einer Anregungsdichte von $315 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ im Bereich der erwähnten Sprungenergie von $100 - 150$ fs auf Werte im Bereich von $50 - 100$ fs abfallen, verringern sich diese im Falle von $F = 35 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ abrupt von ~ 250 fs auf deutlich unter 50 fs.

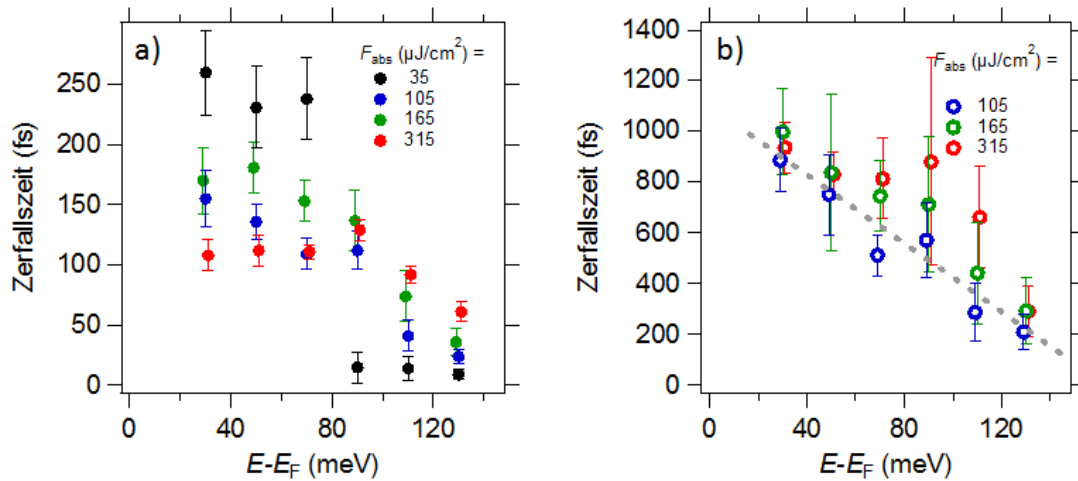


Abbildung 5-18 Anhand der im Text beschriebenen Anpassungsanalyse ermittelte Zerfallszeiten τ_1 (a) und τ_2 (b). Die Fehlerbalken entsprechen der resultierenden Standardabweichung der Anpassungsanalyse². Die gestrichelte graue Linie ist eine lineare Anpassung an die Daten, welche als Grundlage für die Ermittlung der Zerfallszeiten τ_1 für die niedrigste Fluenz von 35 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ verwendet wurde (siehe Text).

5.4.3 Qualitative Erklärung durch den Bosonen-Fenster Effekt

Die mit steigender Fluenz gleichzeitig auftretende Verbreiterung des in Abschnitt 5.4.2 diskutierten Sprunges in den Zerfallszeiten τ_1 und die in Abschnitt 5.2.1 beschriebene Reduktion der effektiven Masse des „Kinks“ bei der charakteristischen Energie von 70 meV ober- und unterhalb von E_F , werfen die Frage nach einer einheitlichen theoretischen Beschreibung sowie einer mit beiden Beobachtungen konsistenten Ursache auf. Eine qualitative Erklärung für dieses Verhalten liefert die schon in vorangehenden Abschnitten (Abschnitt 5.2.1) zitierte Arbeit von *Sentef et al.* [104, 120]. Anhand theoretischer Rechnungen ergibt sich dabei unter Berücksichtigung einer einzigen Bosonenmode bei $\omega = \hbar\Omega$ sowie einer Selbstenergie $\Sigma(E)$ mit einem selbst-konsistenten „Kink“ in ihrem Realteil $\text{Re}(\Sigma(E))$ der sogenannte Bosonen-Fenster Effekt. Dabei definiert die einzelne

² Aufgrund der geringen Anzahl heißer Ladungsträger bei hohen Energien und der dort ebenfalls wesentlich kürzeren Lebenszeiten stehen für die Anpassung in diesem Bereich nur wenige Datenpunkte bei geringer Intensität zur Verfügung, aufgrund dessen die ermittelte Standardabweichung in unzureichendem Maße die existierende Unsicherheit widerspiegelt. Um dies zu verbessern, wurde für die Fehlerbalken bei den Energien 110 und 130 meV ein Bereich gewählt, innerhalb dessen die resultierenden Anpassungsfunktionen die Daten anhand einer persönlichen Beurteilung noch in einem ausreichend plausiblen Maße beschreiben.

charakteristische Bosonenfrequenz Ω die Grenzen eines Bosonen-Fensters $\omega \in [-\Omega, \Omega]$ um das Fermi-Niveau, innerhalb dessen die Elektronen zu wenig Energie besitzen um an die erwähnte Bosonen-Mode der Energie Ω zu koppeln. In diesem Modell führt die optische Anregung durch den Laserpuls zu einer Umverteilung des spektralen Gewichts, was eine Änderung der effektiven transienten Elektron-Boson Wechselwirkung zur Folge hat. Dies liegt darin begründet, dass der für die möglichen Streuprozesse vor und nach der optischen Anregung zur Verfügung stehende Phasenraum beeinflusst wird (Abbildung 5-19).

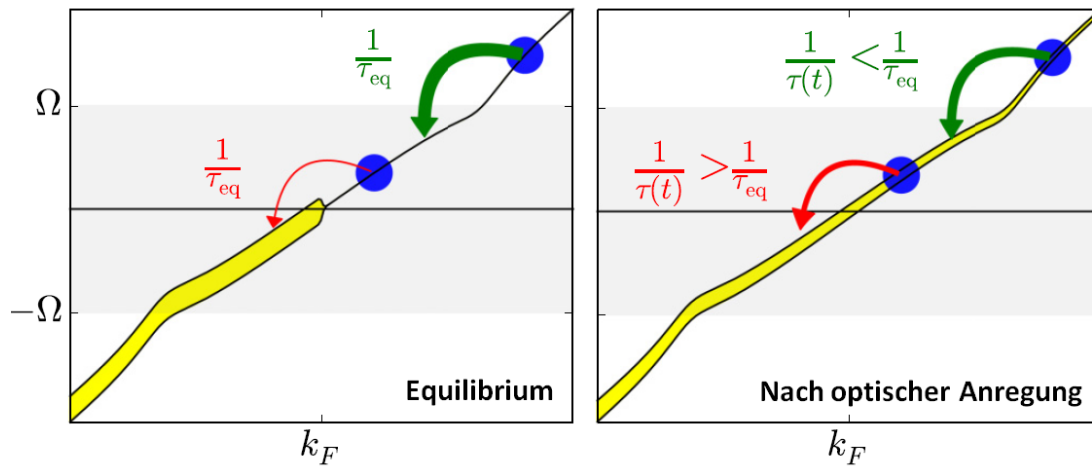


Abbildung 5-19 Schematische Darstellung der Änderung der Streuraten ($1/\tau$) aufgrund der durch die optische Anregung verursachten Umverteilung des spektralen Gewichts. Die Dicke der gelben Linie repräsentiert die Besetzung des Bandes. Im Gleichgewicht sind Streuprozesse innerhalb des Phononen-Fensters unterdrückt, da der Phasenraum für den Endzustand aufgrund der hohen Besetzung unterhalb des Fermi-Niveaus stark begrenzt ist. Gegensätzliches gilt für Streuprozesse außerhalb des Fensters, für die zur Ankopplung an die Phononen-Mode ausreichend Phasenraum zur Verfügung steht. Aufgrund der Umverteilung des spektralen Gewichts durch die optische Anregung verringert (erhöht) sich die Streurrate innerhalb (außerhalb) des Phononen-Fensters. Nach [120]

Im Gleichgewichtszustand wird die Streurate und somit die Lebensdauer eines angeregten Teilchens prinzipiell durch den für einen Streuprozess zur Verfügung stehenden Phasenraum bestimmt. Da die Endzustände im Gleichgewicht (und bei niedrigen Temperaturen) nahezu voll besetzt sind, sind Streuprozesse innerhalb des Bosonen-Fensters unterdrückt, was zu einer Erhöhung der Lebenszeit in diesem Bereich führt. Außerhalb des Phononen-Fensters hingegen steht ausreichend Phasenraum zur Verfügung, weswegen die Lebenszeiten hier deutlich kleiner sind. Wie erwähnt führt die optische Anregung zu einer Umverteilung des spektralen Gewichts, woraufhin sich der zur Verfügung stehende Phasenraum innerhalb bzw. außerhalb des Bosonen-Fensters dementsprechend vergrößert bzw. verkleinert, da durch die Umverteilung nun auch Zustände oberhalb von E_F besetzt sind.

Die Tatsache, dass die Umverteilung des spektralen Gewichts Änderungen in der Streurate mit sich bringt impliziert zudem, dass auch eine Veränderung der Anregefluenz die resultierenden Zerfallszeiten beeinflusst. Demzufolge führt eine Erhöhung der Anregungsdichte zu einer Erhöhung der Lebenszeit innerhalb sowie zu einer Verkleinerung der Lebenszeit außerhalb des Bosonen-Fensters, wobei die Unterschiede zwischen diesen mit größer werdender Fluenz deutlich zunehmen.

Abbildung 5-18 a) zeigt deutlich, dass das anhand der hier vorgestellten Modellrechnungen erwartete Verhalten der fluenzabhängigen Lebenszeiten qualitativ für Bi2212 beobachtet wurde und somit die Zeitskalen der Wechselwirkung der angeregten Ladungsträger mit einer einzelnen bosonischen Mode (τ_1) von allen weiteren involvierten Zerfallsmechanismen separiert werden konnten. τ_2 könnte demzufolge mit der Kopplung der Ladungsträger an weitere akustische Moden in Zusammenhang stehen, auf welche hier jedoch nicht weiter eingegangen wird [25]. Die Tatsache, dass sich die hier beschriebenen Effekte bei einer Energie $\hbar\Omega$ oberhalb des Fermi-niveaus mit einer theoretischen Erklärung unter Berücksichtigung nur dieser einen Mode beschreiben lassen ist zudem konsistent mit dem Auftreten des „Kinks“ bei der Energie $-\hbar\Omega$ unterhalb des Fermi-niveaus, welcher ebenfalls unter Verwendung der in dieser theoretischen Beschreibung gemachten Annahme reproduziert wird. Diese Tatsache ist ein starkes Indiz gegen prinzipiell jede zu dem „Kink“ führende Ursache, welcher nicht explizit die Kopplung der Elektronen mit einer einzelnen bosonischen Mode beinhaltet. Hierbei ist jedoch zu berücksichtigen, dass das hier beschriebene Modell vollständig auf jede Art von elektronischer Wechselwirkung verzichtet und auf ausschließlich einer Kopplungsmoden zwischen Elektron und Boson basiert, was der Komplexität des untersuchten Materials nicht vollständig gerecht wird (Abschnitt 2.2.3). Dies

erklärt zudem, dass die in Abschnitt 5.2.1 diskutierten Effekte, welche hauptsächlich elektronischer Natur waren, hier nicht reproduziert werden konnten.

Weiterhin sei erwähnt, dass auch die mit Spinanregung in Verbindung gebrachte Zeitskala welche in einer aktuellen Arbeit behandelt wird [121], nahe an den hier ermittelten Werten für τ_1 oberhalb der charakteristischen Energie von $\hbar\Omega$ liegt. Hierdurch wird deutlich, dass in Zukunft weitere Experimente, mit verbesserten Möglichkeiten zur Beobachtung noch kürzerer Zerfallszeiten von Vorteil wären um die Frage nach dem Ursprung des Kinks sowie einer eventuellen Verbindung mit der für die Supraleitung verantwortlichen Wechselwirkung abschließend zu klären.

6 Zusammenfassung

Gegenstand der vorliegenden Arbeit war die Untersuchung des Hochtemperatursupraleiters Bi2212 in der „Pseudogap“-Phase mittels zeit- und winkelaufgelöster Photoemissionsspektroskopie. In Kooperation mit den *Brookhaven National Laboratory* wurde die dynamische Antwort des elektronischen Systems auf die optische Anregung mittels ultrakurzer Laserpulse in optimal- und unterdotierten Materialien in Abhängigkeit der Fluenz und des Impulses analysiert.

In Bezug auf die elektronische Struktur wurden zwei neue Phänomene diskutiert, welche aufgrund ihres charakteristischen Zeitverhaltens von unterschiedlicher mikroskopischer Herkunft sein müssen. Das erste ist eine transiente Änderung der effektiven Masse m^* entlang der nodalen Linie im Bereich des bekannten „Kinks“ bei einer Bindungsenergie von $E - E_F = -70$ meV. Dieser Effekt ist innerhalb der hier vorliegenden Zeitauflösung von ~ 100 fs zu beobachten weswegen er hauptsächlich als ein durch Licht induzierter Prozess interpretiert werden kann. Die Anwesenheit des Anregepulses führt demnach zu einer Störung der zugrundeliegenden elektronischen Wechselwirkung, welche am Auftreten des „Kink“ bei $E - E_F = -70$ meV beteiligt sind.

Der zweite Effekt ist eine photoinduzierte Veränderung der Fermifläche des untersuchten Kuprates Bi2212 welche anhand einer Verschiebung des Fermiflächenvektors k_F diskutiert wird und als eine effektive Veränderung der Lochdotierung des Materials interpretiert werden kann. Diese sogenannte Photodotierung weist bei jedem untersuchten Zeitpunkt nach der optischen Anregung einen linearen Zusammenhang in Bezug auf die Fluenz des Anregepulses auf. Im Gegensatz zu der Änderung in der effektiven Masse ist die Verschiebung des Fermiflächenvektors in einem Zeitraum von 50-100 fs nach der optischen Anregung am

deutlichsten Ausgeprägt, was auf einen durch die Anregung von Sekundärelektronen hervorgerufenen Prozess hindeutet. Nach ca. einer Pikosekunde entspricht k_F wieder dem Ausgangswert, was auf eine durch Elektron-Phonon Kopplung verursachte Relaxation hindeutet.

Unter Zuhilfenahme des YRZ-Modells wurde zudem anhand impulsabhängiger Messungen unterschiedlicher Dotierungen gezeigt, dass die durch optische Anregung erzeugte Veränderung der Fermifläche qualitativ konsistent mit einer effektiven Erhöhung der Lochdotierung ist. Bei geeigneter Auswahl der Anfangsparameter liefert dieses Verhalten vielversprechende potentielle Anwendungsmöglichkeiten in Bezug auf photoinduzierte Phasenübergänge zwischen einem isolierenden und metallischen oder sogar supraleitenden Zustand. Optoelektronische Bauelemente, welche sich dies zu Nutze machen wären wissenschaftlich sowie technologisch von großem Interesse.

Die Tatsache, dass es sich bei den hier diskutierten Effekten um kleinste Änderungen in der elektronischen Struktur handelt, erschwert eine exakte Quantifizierung des transienten Zustandes in Bezug auf eine effektive Änderung der Dotierung. Weiterführende Experimente an stärker unterdotierten Proben, bei denen der beobachtete Effekt stärker ausgeprägt sein sollte, wären sinnvoll, um die hier gezogenen Schlussfolgerungen weiter zu untermauern. Zudem würde natürlich, trivialerweise, eine verbesserte Energie- und Impulsauflösung den Vergleich der transient erzeugten Phase mit dem Gleichgewichtszustand einer anderen chemischen Dotierung erheblich erleichtern, auch wenn dies beim derzeitigen Stand der Technik schwer zu realisieren ist.

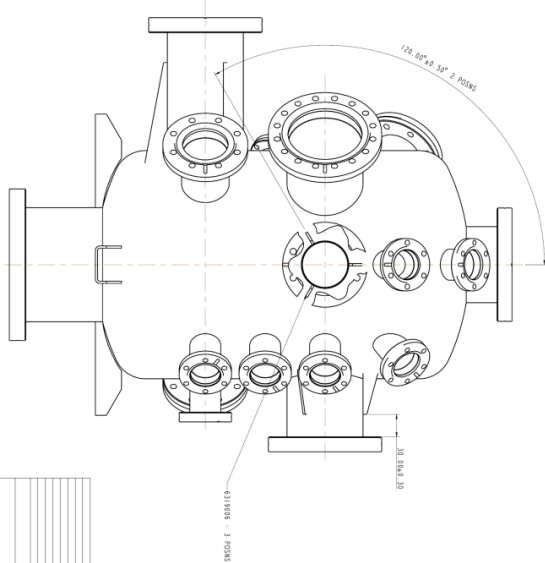
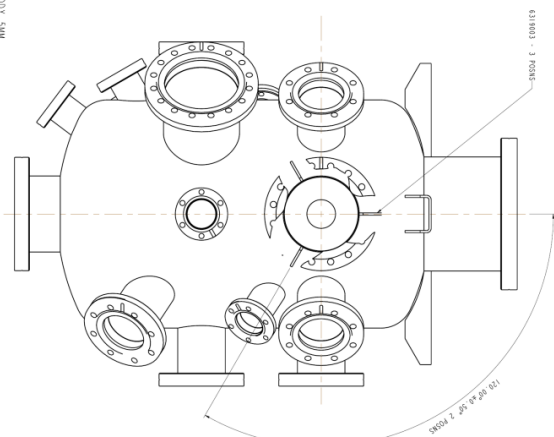
Weiterhin wurde die energie- und fluenzabhängige Dynamik heißer Elektronen nach optischer Anregung in der „Pseudogap“-Phase analysiert. Hierbei konnte ein biexponentieller Zerfall beobachtet werden, welcher sich durch das Auftreten einer langsamen und einer schnellen Komponente auszeichnet. Die langsame Komponente zeigt ein von der Fluenz des Anregepulses weitgehend unabhängiges Verhalten, wobei die zugehörige Zeitkonstante mit steigender Energie in einem Bereich von $E - E_F = 30 - 130$ meV von ~ 1 ps auf ~ 300 fs abnimmt. Im Gegensatz dazu weist die schnelle Komponente eine deutliche Fluenz- und Energieabhängigkeit auf. Das Verhalten entspricht qualitativ dem eines bei der für das Material Bi2212 charakteristischen Energie von 70 meV auftretenden adiabestischen Punktes, wie er von *Kemper et al.* anhand theoretischer Modellrechnungen vorausgesagt worden ist [120]. Entsprechend dieses Modells ist das Auftreten dieses Punktes eine direkte Folge der

Kopplung von Elektronen an eine einzelne bosonischen Mode bei -70 meV. Dies entspricht zudem der bekannten „Kink“-Energie in der Dispersion von Bi2212, welcher ebenfalls durch das Modell reproduziert wird. Durch die Ankopplung des elektronischen Systems an eine Bosonenmode mit wohldefinierter Energie können oberhalb dieser Energie angeregte Elektronen aufgrund von Phasenraumargumenten besser an diese Mode koppeln als unterhalb dieser Schwelle, wobei der Unterschied in den resultierenden Zerfallszeiten mit kleiner werdenden Anregefluenzen deutlich zunimmt. Ungeachtet der Tatsache, dass bei diesen Ausführungen ausschließlich die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Bosonen anhand einer Mode berücksichtigt wurde, was der Komplexität dieses stark korrelierten Materials nicht gerecht wird, deutet die qualitative Ähnlichkeit der beobachteten und theoretischen Effekte auf eine Relevanz der Elektron-Boson Kopplung in den Kupraten hin.

A Technische Zeichnungen

A1. μ -Metall UHV-Kammer	126
A2. Der Heliumkryostat	128
A3. Das Goniometer	129





1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103	104	105	106	107	108	109	110	111	112	113	114	115	116	117	118	119	120	121	122	123	124	125	126	127	128	129	130	131	132	133	134	135	136	137	138	139	140	141	142	143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	153	154	155	156	157	158	159	160	161	162	163	164	165	166	167	168	169	170	171	172	173	174	175	176	177	178	179	180	181	182	183	184	185	186	187	188	189	190	191	192	193	194	195	196	197	198	199	200	201	202	203	204	205	206	207	208	209	210	211	212	213	214	215	216	217	218	219	220	221	222	223	224	225	226	227	228	229	230	231	232	233	234	235	236	237	238	239	240	241	242	243	244	245	246	247	248	249	250	251	252	253	254	255	256	257	258	259	260	261	262	263	264	265	266	267	268	269	270	271	272	273	274	275	276	277	278	279	280	281	282	283	284	285	286	287	288	289	290	291	292	293	294	295	296	297	298	299	300	301	302	303	304	305	306	307	308	309	310	311	312	313	314	315	316	317	318	319	320	321	322	323	324	325	326	327	328	329	330	331	332	333	334	335	336	337	338	339	340	341	342	343	344	345	346	347	348	349	350	351	352	353	354	355	356	357	358	359	360	361	362	363	364	365	366	367	368	369	370	371	372	373	374	375	376	377	378	379	380	381	382	383	384	385	386	387	388	389	390	391	392	393	394	395	396	397	398	399	400	401	402	403	404	405	406	407	408	409	410	411	412	413	414	415	416	417	418	419	420	421	422	423	424	425	426	427	428	429	430	431	432	433	434	435	436	437	438	439	440	441	442	443	444	445	446	447	448	449	450	451	452	453	454	455	456	457	458	459	460	461	462	463	464	465	466	467	468	469	470	471	472	473	474	475	476	477	478	479	480	481	482	483	484	485	486	487	488	489	490	491	492	493	494	495	496	497	498	499	500	501	502	503	504	505	506	507	508	509	510	511	512	513	514	515	516	517	518	519	520	521	522	523	524	525	526	527	528	529	530	531	532	533	534	535	536	537	538	539	540	541	542	543	544	545	546	547	548	549	550	551	552	553	554	555	556	557	558	559	560	561	562	563	564	565	566	567	568	569	570	571	572	573	574	575	576	577	578	579	580	581	582	583	584	585	586	587	588	589	590	591	592	593	594	595	596	597	598	599	600	601	602	603	604	605	606	607	608	609	610	611	612	613	614	615	616	617	618	619	620	621	622	623	624	625	626	627	628	629	630	631	632	633	634	635	636	637	638	639	640	641	642	643	644	645	646	647	648	649	650	651	652	653	654	655	656	657	658	659	660	661	662	663	664	665	666	667	668	669	670	671	672	673	674	675	676	677	678	679	680	681	682	683	684	685	686	687	688	689	690	691	692	693	694	695	696	697	698	699	700	701	702	703	704	705	706	707	708	709	710	711	712	713	714	715	716	717	718	719	720	721	722	723	724	725	726	727	728	729	730	731	732	733	734	735	736	737	738	739	740	741	742	743	744	745	746	747	748	749	750	751	752	753	754	755	756	757	758	759	760	761	762	763	764	765	766	767	768	769	770	771	772	773	774	775	776	777	778	779	780	781	782	783	784	785	786	787	788	789	790	791	792	793	794	795	796	797	798	799	800	801	802	803	804	805	806	807	808	809	810	811	812	813	814	815	816	817	818	819	820	821	822	823	824	825	826	827	828	829	830	831	832	833	834	835	836	837	838	839	840	841	842	843	844	845	846	847	848	849	850	851	852	853	854	855	856	857	858	859	860	861	862	863	864	865	866	867	868	869	870	871	872	873	874	875	876	877	878	879	880	881	882	883	884	885	886	887	888	889	890	891	892	893	894	895	896	897	898	899	900	901	902	903	904	905	906	907	908	909	910	911	912	913	914	915	916	917	918	919	920	921	922	923	924	925	926	927	928	929	930	931	932	933	934	935	936	937	938	939	940	941	942	943	944	945	946	947	948	949	950	951	952	953	954	955	956	957	958	959	960	961	962	963	964	965	966	967	968	969	970	971	972	973	974	975	976	977	978	979	980	981	982	983	984	985	986	987	988	989	990	991	992	993	994	995	996	997	998	999	1000
---	---	---	---	---	---	---	---	---	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	------

top view (air side)

10 pin electrical feedthrough
 DN16CF Goniometer
 LHe-In Ø12mm quick lock
 DN16CF reserve
 He-Out
 Ø68
 Ø91,33°
 A1, A2, A3, A4

bottom view (vac. side)

DN16CF Goniometer
 He-Out
 reserve
 Ø64
 45°, 80°, 90°, 40°
 A1, A2, A3, A4

Side View Details:

- ca. 125
- ca. 40°
- drawn offset
- electrical feedthrough (10pin) DN16CF
 4 x temp.-sensor;
 2x heater; 4 unassigned
- Flange DN100CF
- stainless steel 1.4306
- regular copper seal of DN100 CF
- 5x M6 (drawn offset)
- max. Ø4
- Ø64
- 47
- 10
- 665,5
- Ø30
- stainless steel 1.4301/1.4541
- inner tubes: stainless steel 1.4301/1.4541
- exhaust gas cooled heat exchanger (copper)
- copper
- stainless steel 1.4301/1.4541
- stainless steel 1.4301
- copper
- copper
- copper
- copper
- sapphire plate
- thermal coupling copper
- titanium screws M3 with special washers
- 3
- 10
- Ø23
- Ø28
- Ø32
- Bottom view
- 4x M3-threads with Bronze-Inserts
- Ø16

Material Legend:

- stainless steel 1.4301
- stainless steel 1.4301/1.4541
- inner tubes: stainless steel 1.4301/1.4541
- exhaust gas cooled heat exchanger (copper)
- copper
- stainless steel 1.4301/1.4541
- stainless steel 1.4301
- copper
- copper
- copper
- copper
- sapphire plate
- thermal coupling copper
- titanium screws M3 with special washers
- 4x M3-threads with Bronze-Inserts

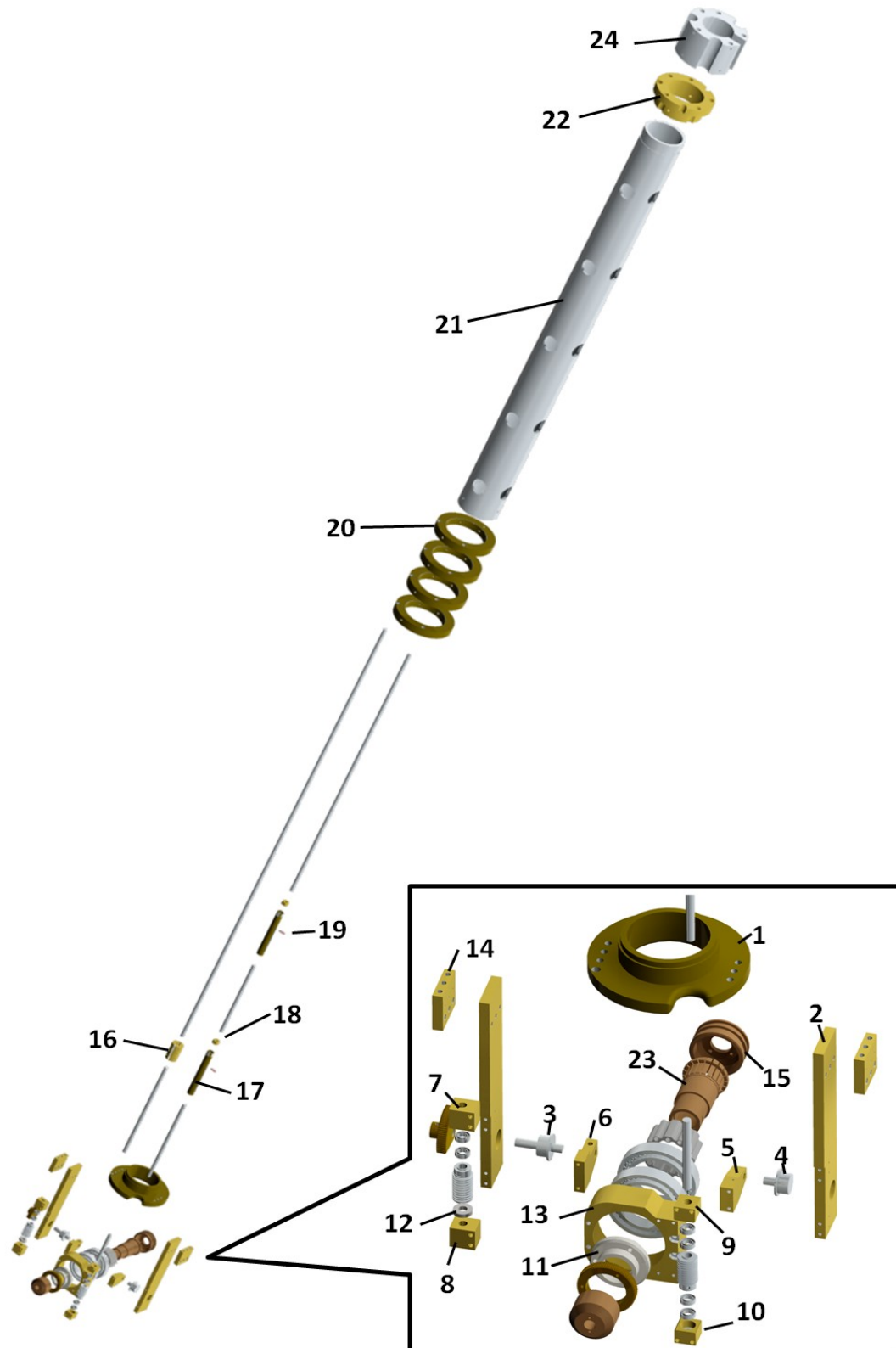
Heat exchanger temperature range ca. 3,5-325 K

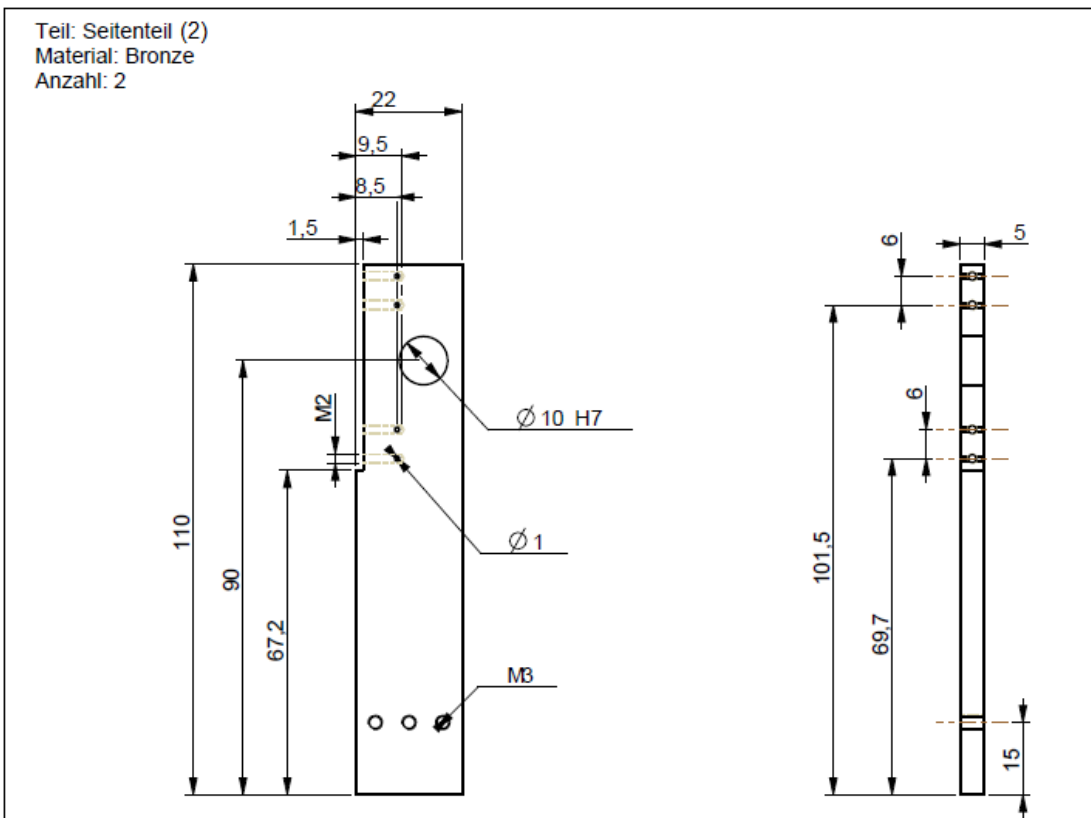
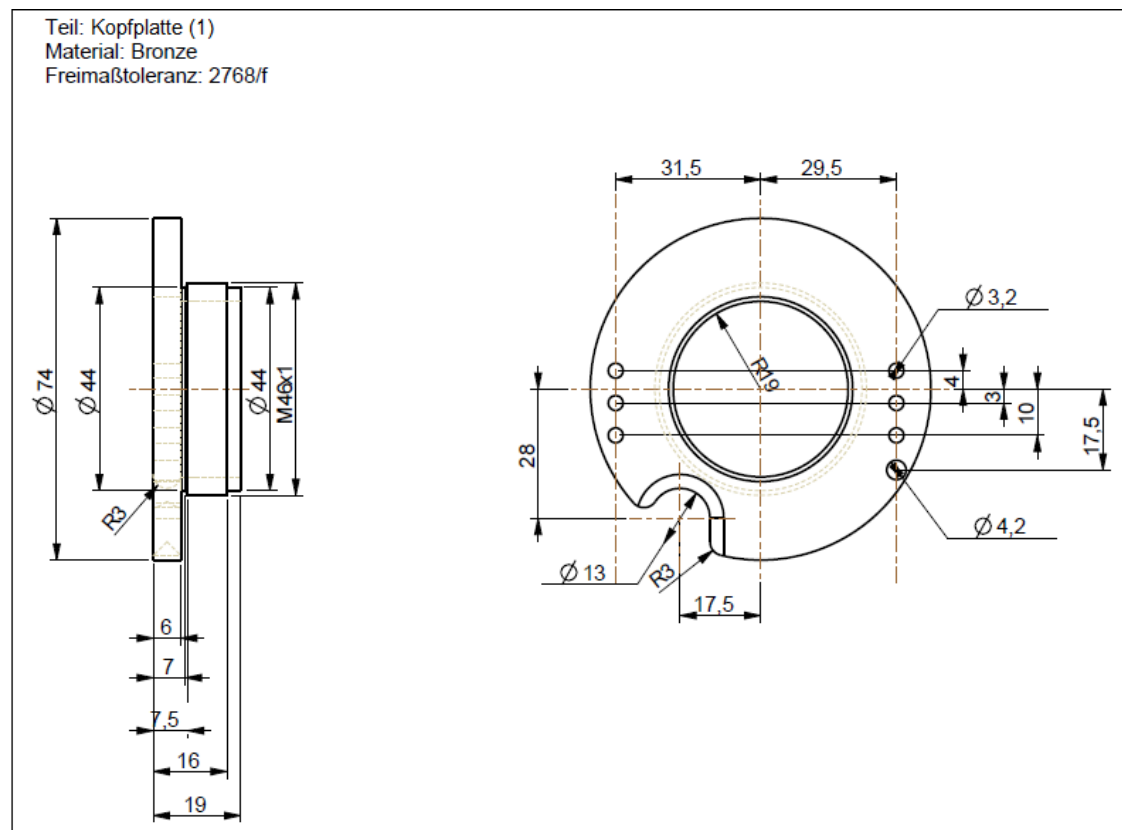
AUFTRAG NR.

Approval drawing
 16.08.2012
 KONTI KryoStat UHV

There is no guarantee of certain values of permeability!

A3. Das Goniometer



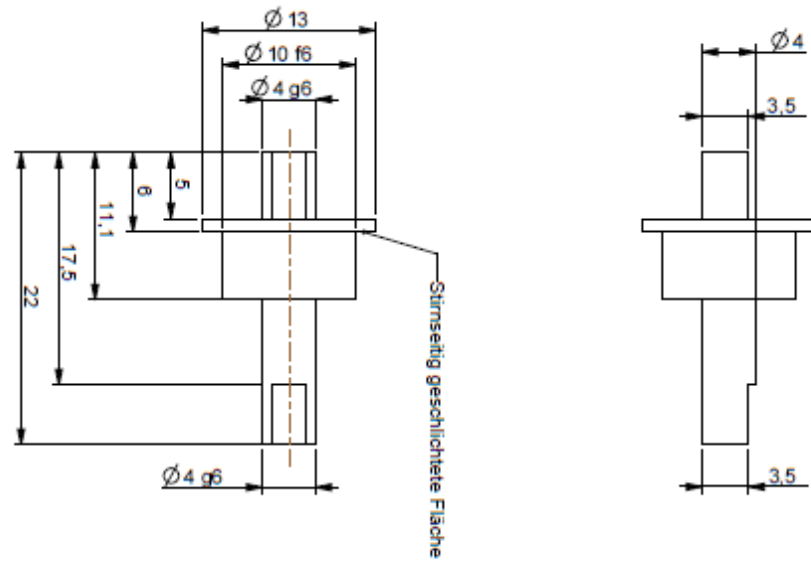


TITAN

Stückzahl: 1

Teilenummer: 3

alle umlaufenden Kanten mit Fase versehen

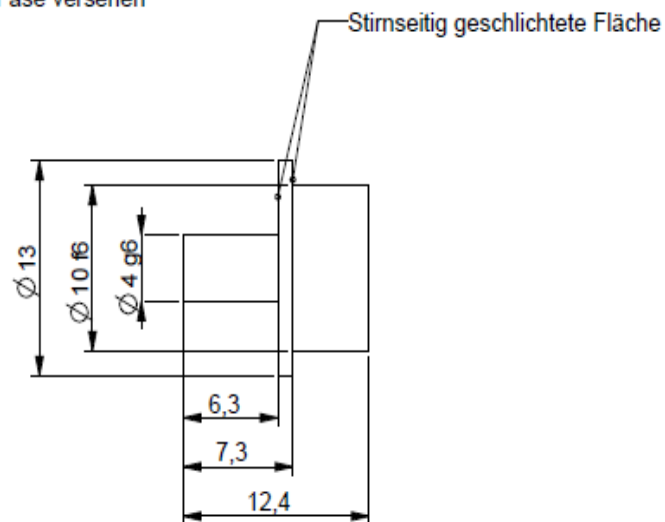


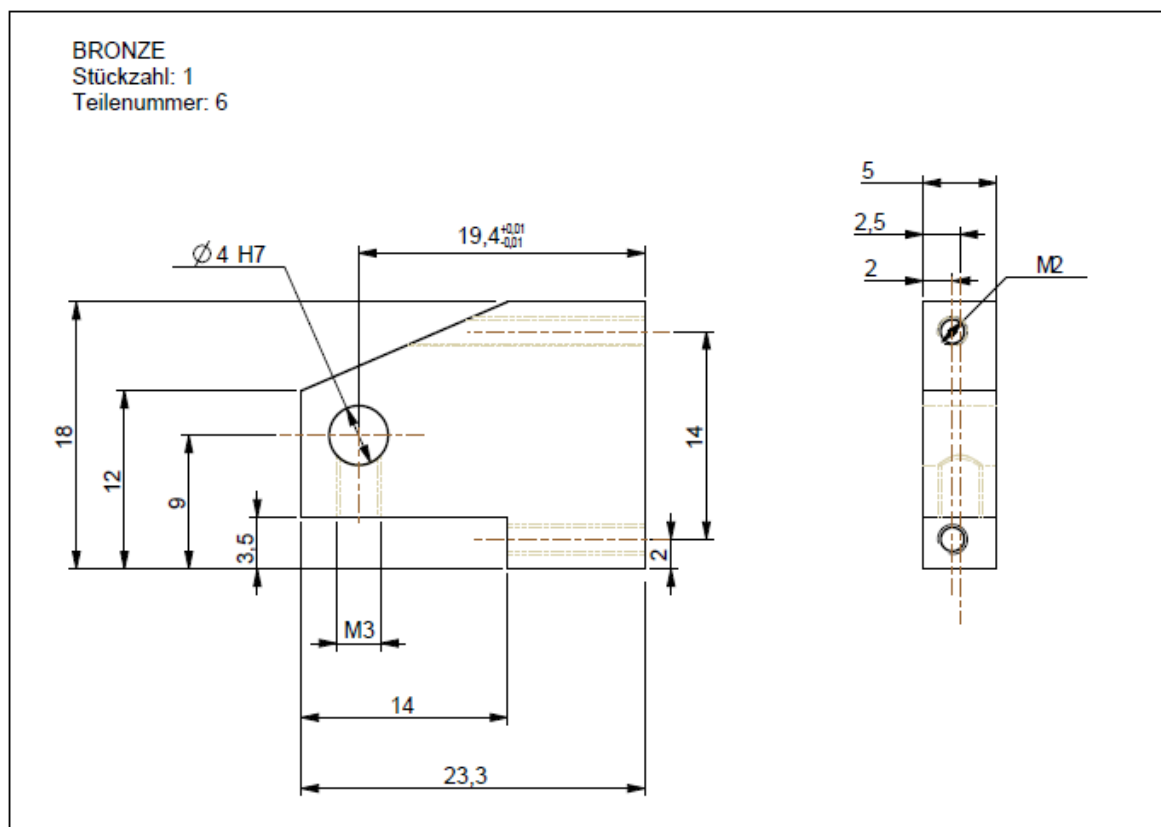
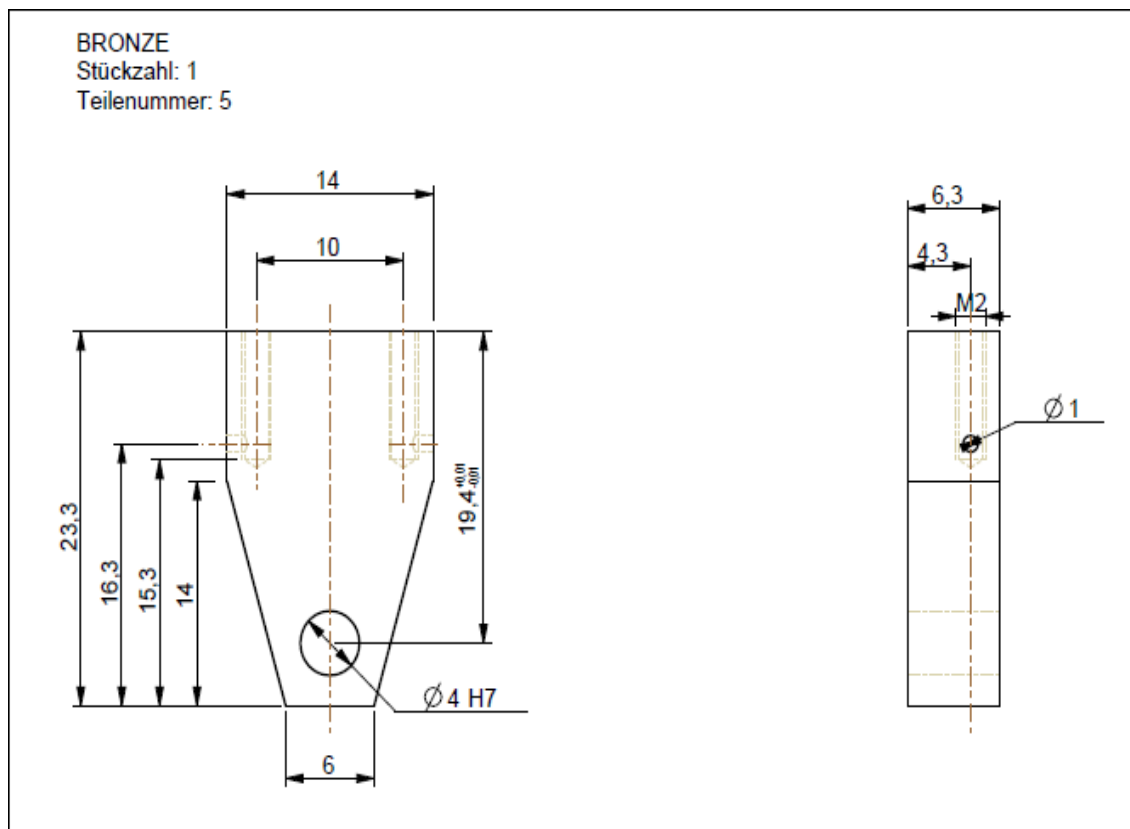
TITAN

Stückzahl: 1

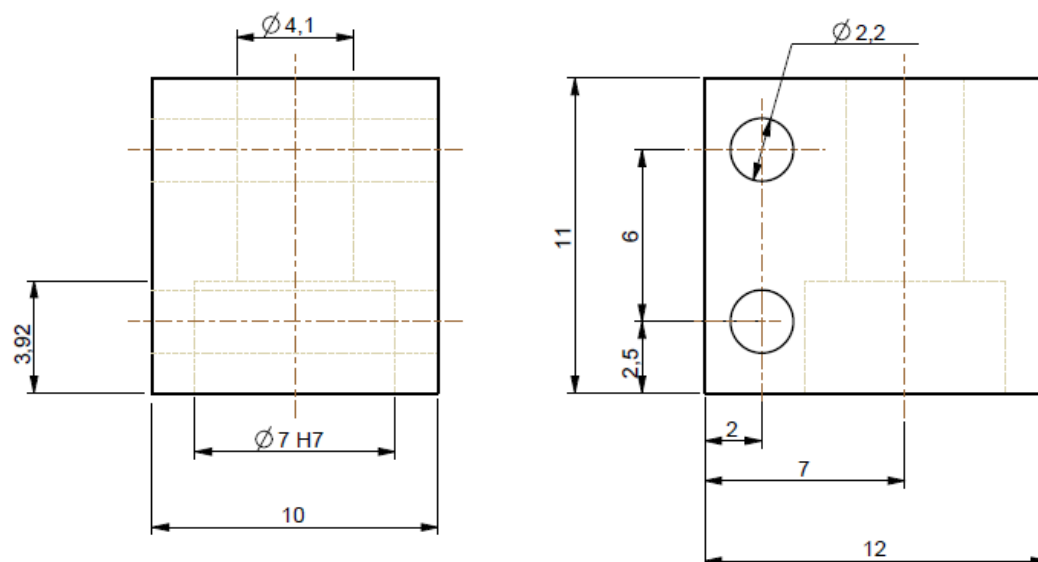
Teilenummer: 4

alle umlaufenden Kanten mit Fase versehen

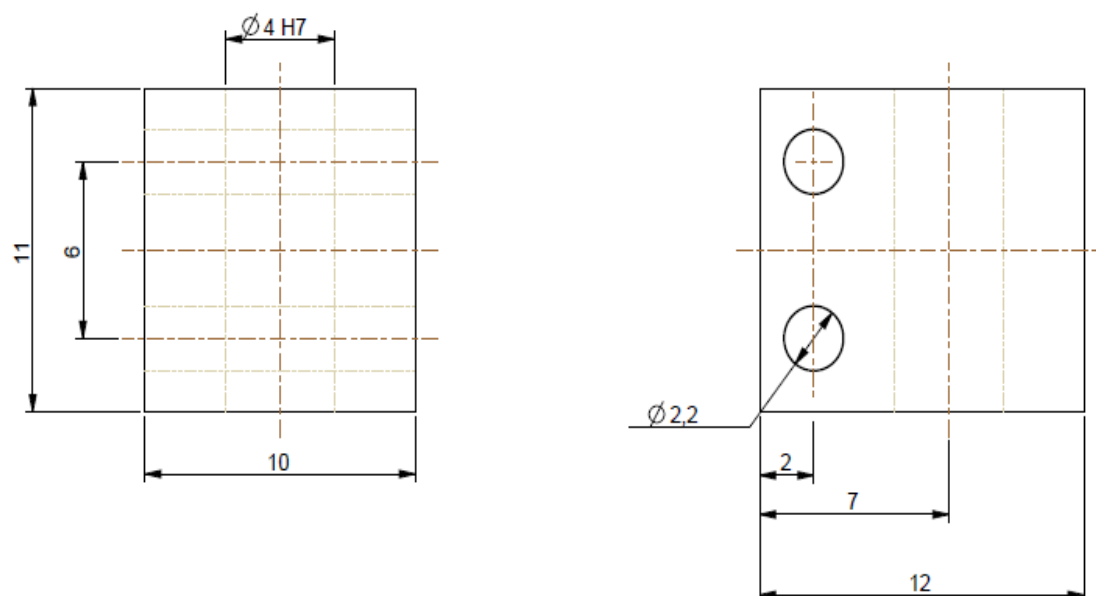


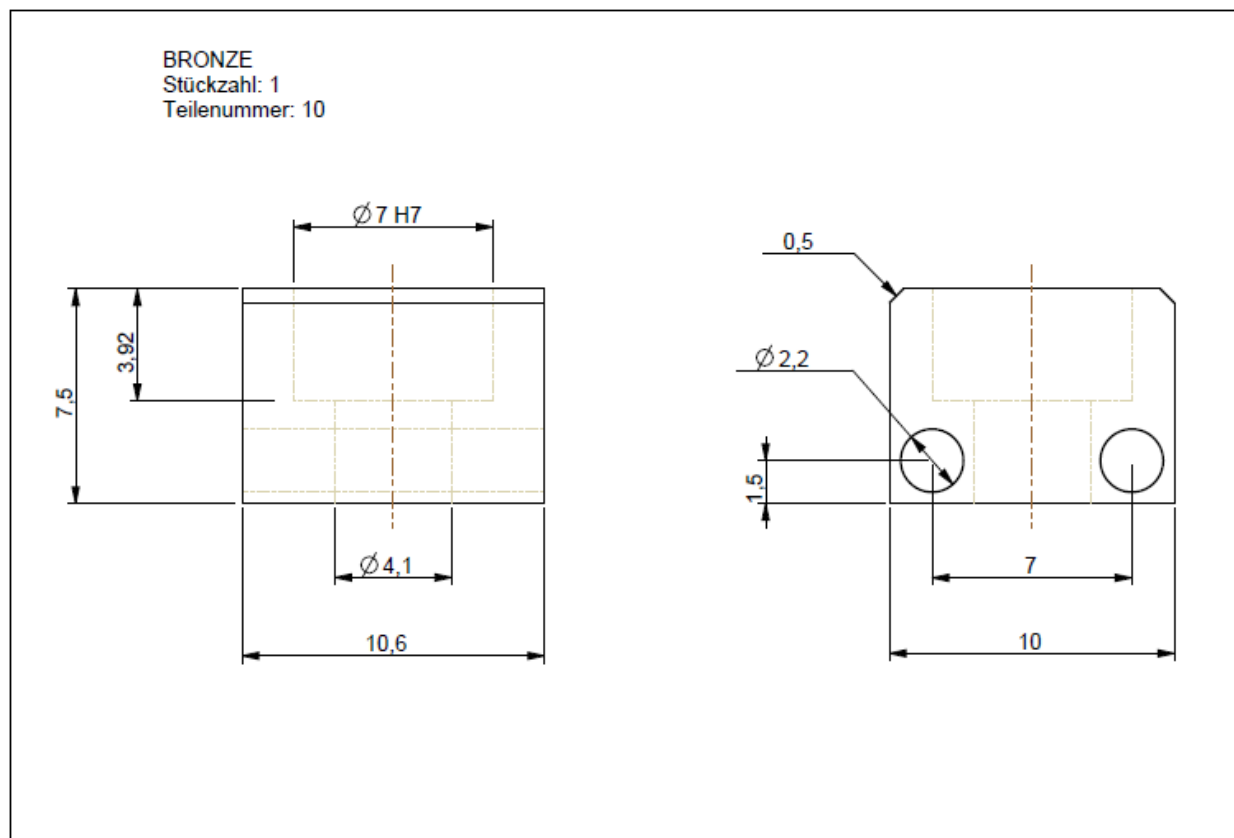
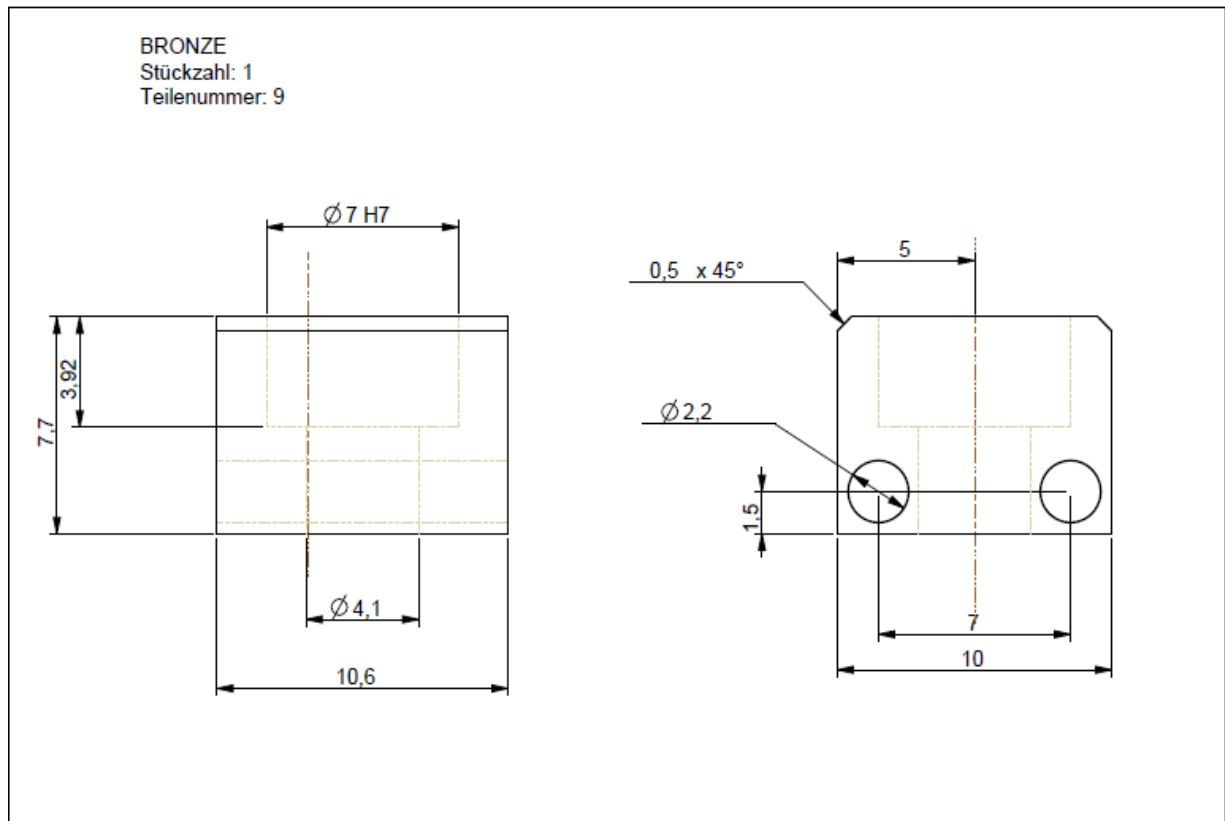


BRONZE
Stückzahl: 1
Teilenummer: 7

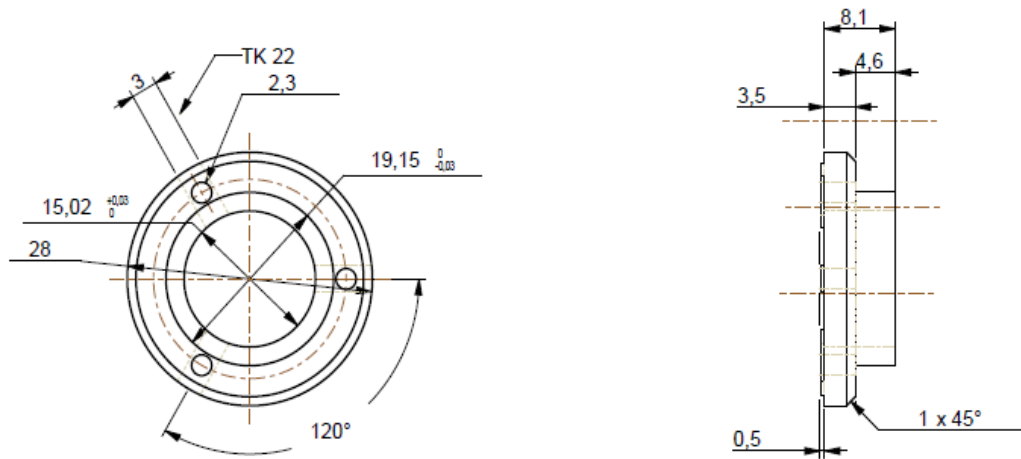


BRONZE
Stückzahl: 1
Teilenummer: 8

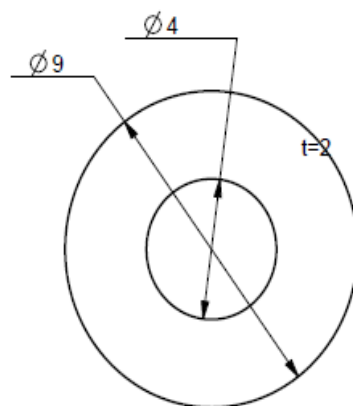


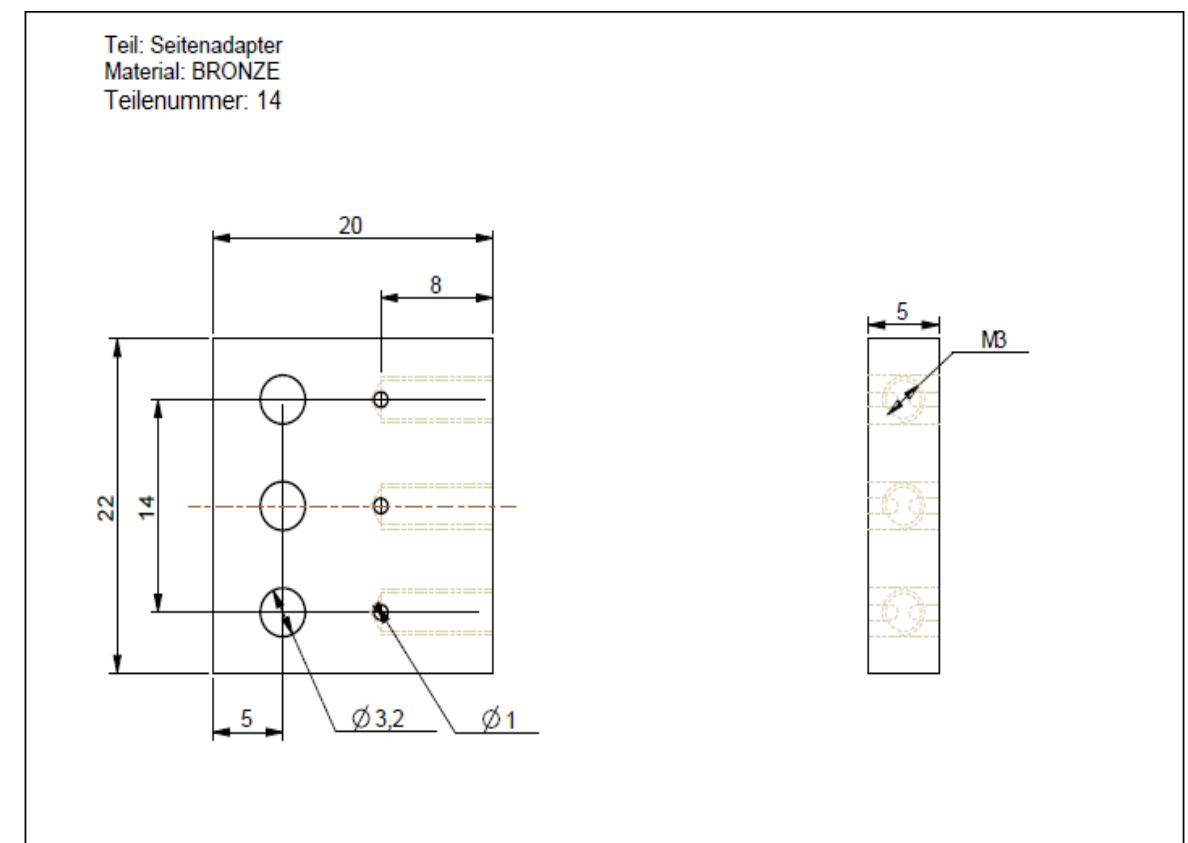


MACOR
Stückzahl: 1
Teilenummer: 11

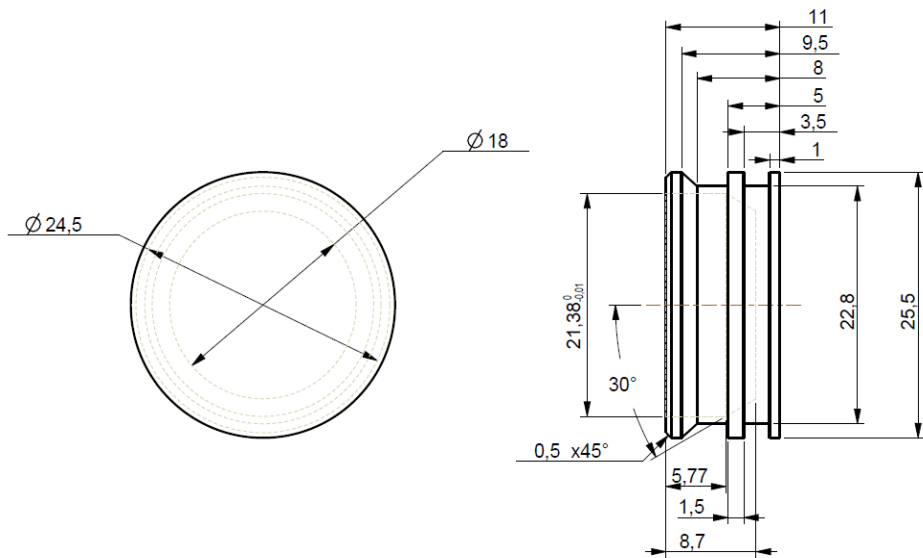


MACOR
Stückzahl: 1
Teilenummer: 12

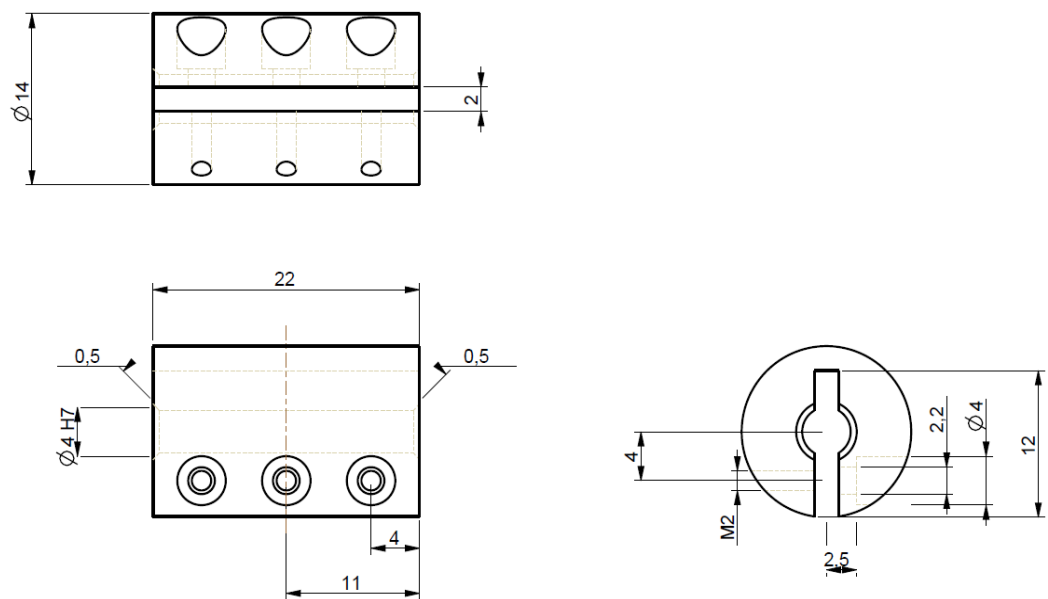




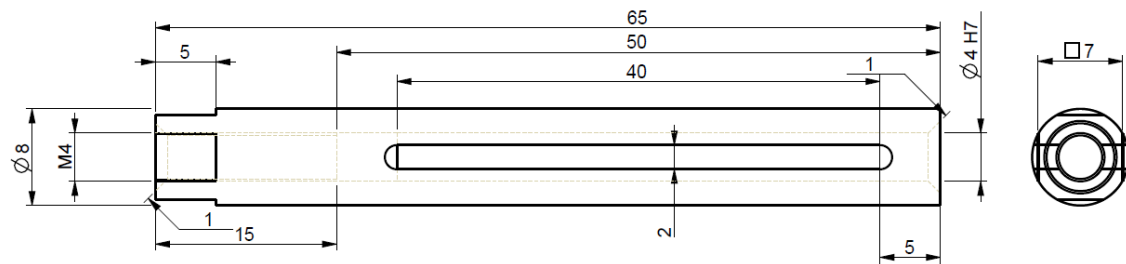
Teil: Puck
Material: Molybdän
Stückzahl: 4
Teilenummer: 15



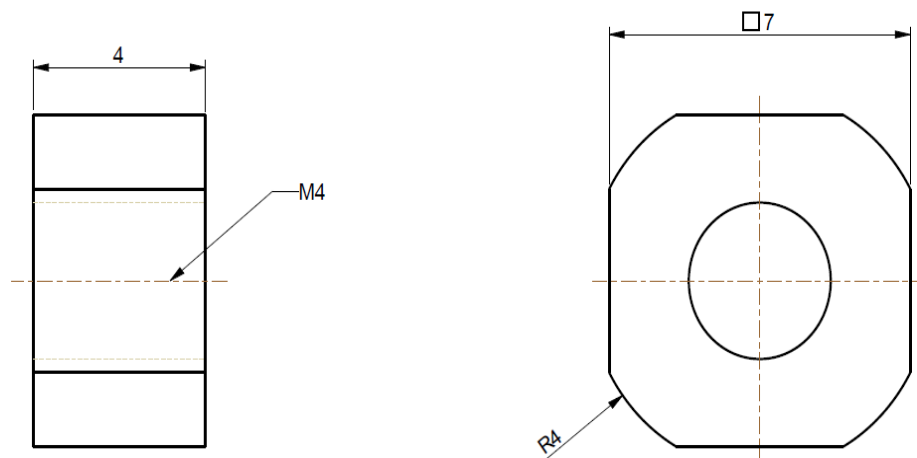
Teil: Achskupplung
Material: Bronze
Anzahl: 2 Stück
Teilenummer: 16



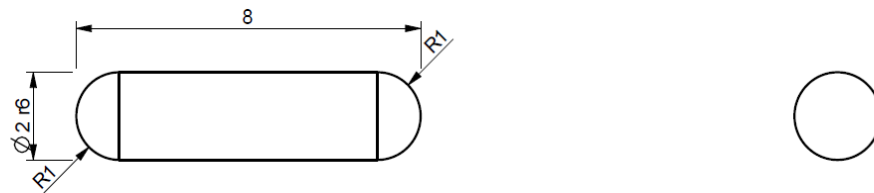
Teil: ACHSHUB
Material: Bronze
Stückzahl: 3
Teilenummer: 17



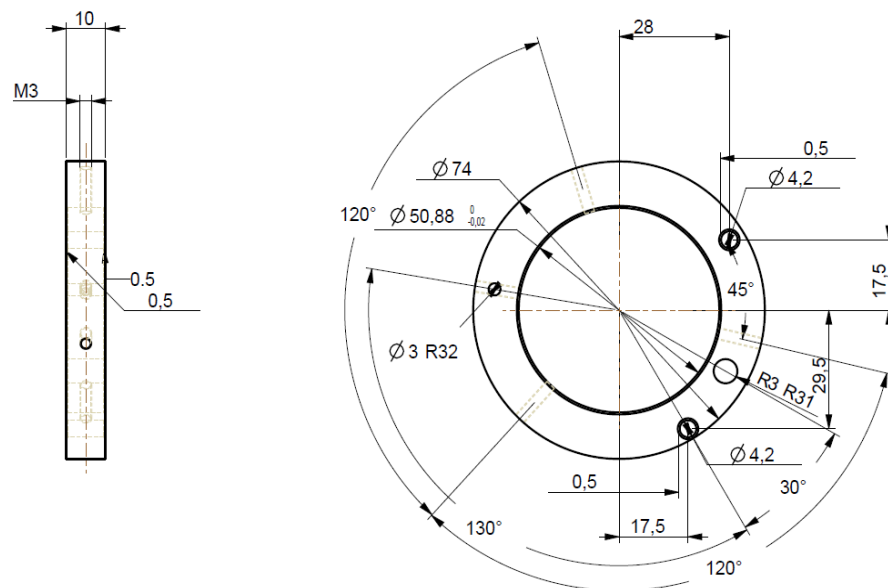
Teil: Kontermutter
Material: Bronze
Stückzahl: 6
Teilenummer: 18



Teil: Achszapfen
 Material: Titan
 Stückzahl: 6
 Teilenummer: 19

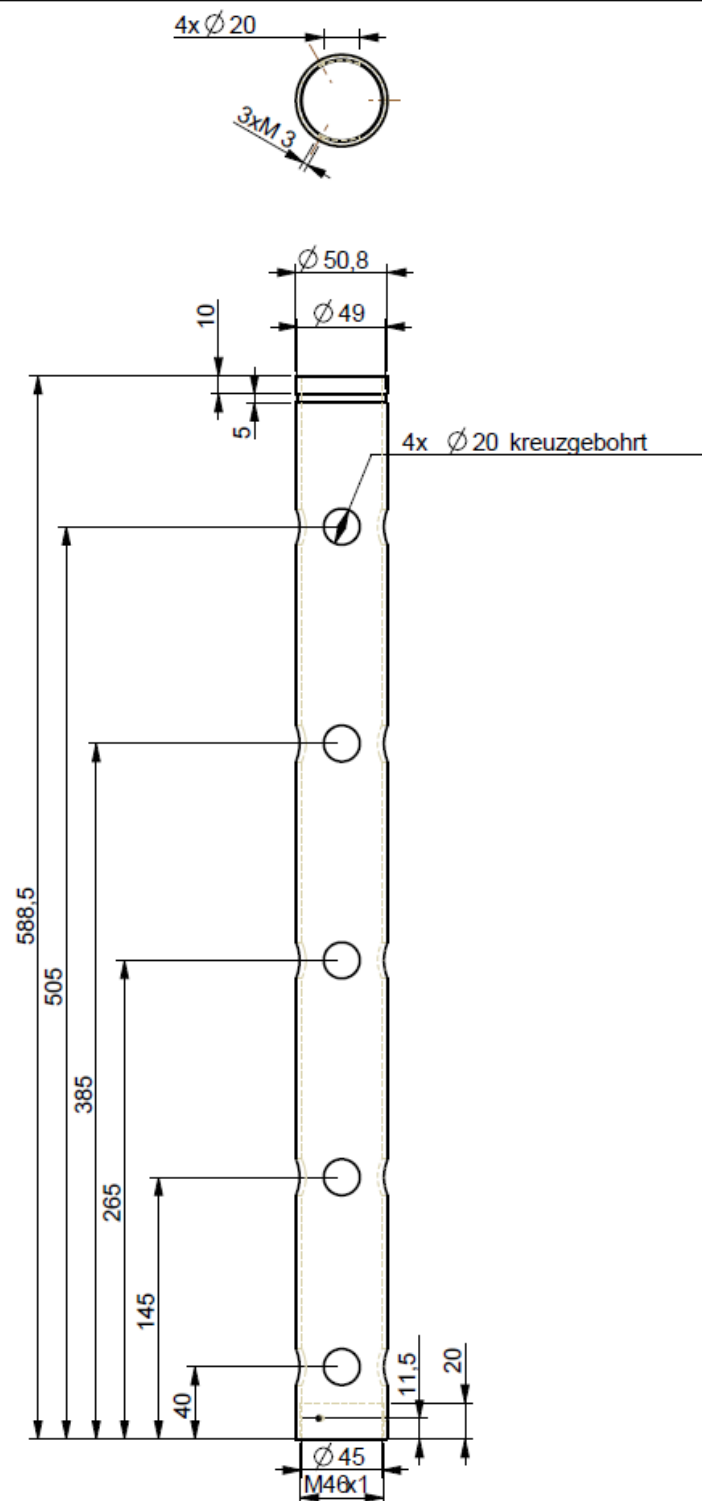


Teilname: Führungsring
 Material: Bronze
 Stückzahl: 6
 Anmerkungen: Alle Fasen beidseitig, 0,5mm
 Teilenummer: 20

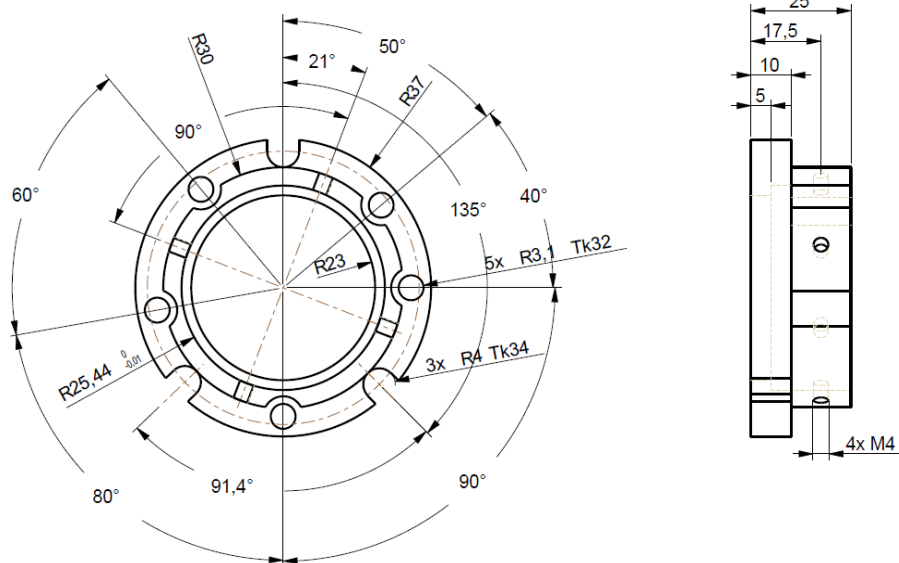


Teil: Titanrohr
Material: Titan
Stückzahl: 1

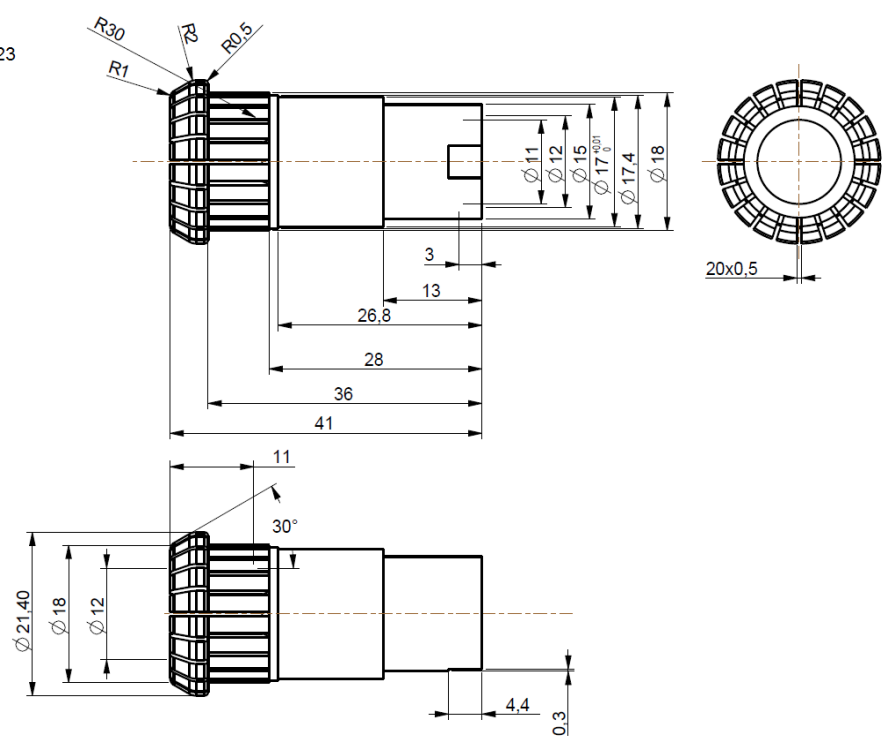
Oberfläche trovalisieren
und quarzsandstrahlen



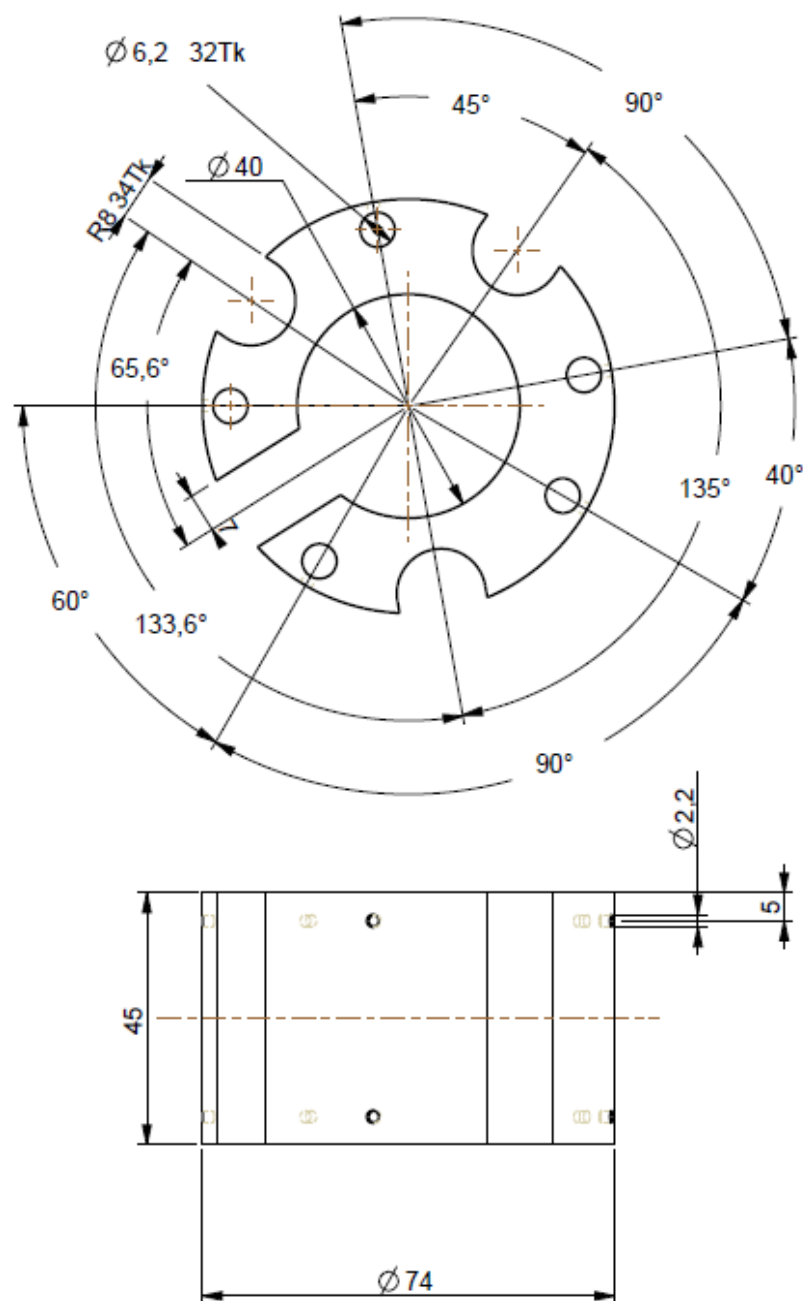
Teil: CUSTOMFLANSCH
Material: Bronze
Teilenummer: 22



Spannhülse
Material: T800
Teilenummer: 23



Teil: Spacer Topflansch
Material: Bronze
Teilenummer: 24



Literaturverzeichnis

1. J. G. Bednorz, K. A. Müller, Possible high T_c superconductivity in the Ba–La–Cu–O system. *Z. Physik B - Condensed Matter* **64**, 189-193 (1986).
2. P. J. Ford, G. A. Saunders, *The Rise of the Superconductors*. (CRC Press, Boca Raton, 2005).
3. A. Marouchkine, *Room-Temperature Superconductivity*. (Cambridge International Science Publishing, Cambridge, 2004).
4. W. E. Pickett, Design for a Room-Temperature Superconductor. *J Supercond* **19**, 291-297 (2006).
5. P. Lee, N. Nagaosa, X.-G. Wen, Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity. *Reviews of Modern Physics* **78**, 17-85 (2006).
6. C. C. Tsuei, J. R. Kirtley, Pairing symmetry in cuprate superconductors. *Reviews of Modern Physics* **72**, 969-1016 (2000).
7. A. Damascelli, Z. Hussain, Z.-X. Shen, Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors. *Reviews of modern physics* **75**, 473 (2003).
8. Ø. Fischer, M. Kugler, I. Maggio-Aprile, C. Berthod, C. Renner, Scanning tunneling spectroscopy of high-temperature superconductors. *Reviews of Modern Physics* **79**, 353-419 (2007).
9. J. Bardeen, L. Cooper, J. Schrieffer, Microscopic Theory of Superconductivity. *Physical Review* **106**, 162-164 (1957).
10. J. Bardeen, L. Cooper, J. Schrieffer, Theory of Superconductivity. *Physical Review* **108**, 1175-1204 (1957).
11. L. Taillefer, Scattering and Pairing in Cuprate Superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics* **1**, 51-70 (2010).
12. D. N. Basov, T. Timusk, Electrodynamics of high- T_c superconductors. *Reviews of Modern Physics* **77**, 721-779 (2005).

13. C. Varma, High-temperature superconductivity: Mind the pseudogap. *Nature* **468**, 184-185 (2010).
14. S. Hufner, M. A. Hossain, A. Damascelli, G. A. Sawatzky, Two gaps make a high-temperature superconductor? *Reports on Progress in Physics* **71**, 062501 (2008).
15. S. Chakravarty, R. B. Laughlin, D. K. Morr, C. Nayak, Hidden order in the cuprates. *Physical Review B* **63**, 094503 (2001).
16. V. Emery, S. A. Kivelson, Importance of phase fluctuations in superconductors with small superfluid density. *Nature* **374**, (1995).
17. T. Valla, A. V. Fedorov, P. D. Johnson, B. O. Wells, S. L. Hulbert, Q. Li, G. D. Gu, N. Koshizuka, Evidence for Quantum Critical Behavior in the Optimally Doped Cuprate $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Science* **285**, 2110-2113 (1999).
18. A. Lanzara, P. V. Bogdanov, X. J. Zhou, S. A. Kellar, D. L. Feng, E. D. Lu, T. Yoshida, H. Eisaki, A. Fujimori, K. Kishio, J. I. Shimoyama, T. Noda, S. Uchida, Z. Hussain, Z. X. Shen, Evidence for ubiquitous strong electron-phonon coupling in high-temperature superconductors. *Nature* **412**, 510-514 (2001).
19. R. Cortés, L. Rettig, Y. Yoshida, H. Eisaki, M. Wolf, U. Bovensiepen, Momentum-Resolved Ultrafast Electron Dynamics in Superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Physical Review Letters* **107**, 097002 (2011).
20. C. L. Smallwood, W. Zhang, T. L. Miller, C. Jozwiak, H. Eisaki, D.-H. Lee, A. Lanzara, Time- and momentum-resolved gap dynamics in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Physical Review B* **89**, 115126 (2014).
21. J. Graf, C. Jozwiak, C. L. Smallwood, H. Eisaki, R. A. Kaindl, D. H. Lee, A. Lanzara, Nodal quasiparticle meltdown in ultrahigh-resolution pump-probe angle-resolved photoemission. *Nat Phys* **7**, 805-809 (2011).
22. J. Demsar, B. Podobnik, V. V. Kabanov, T. Wolf, D. Mihailovic, Superconducting Gap Δ_c the Pseudogap Δ_p , and Pair Fluctuations above T_c in Overdoped $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ from Femtosecond Time-Domain Spectroscopy. *Physical Review Letters* **82**, 4918-4921 (1999).
23. D. Jure, L. S. John, J. T. Antoinette, Dynamics of photoexcited quasiparticles in heavy electron compounds. *Journal of Physics: Condensed Matter* **18**, R281 (2006).
24. C. Giannetti, G. Coslovich, F. Cilento, G. Ferrini, H. Eisaki, N. Kaneko, M. Greven, F. Parmigiani, Discontinuity of the ultrafast electronic response of underdoped superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ strongly excited by ultrashort light pulses. *Physical Review B* **79**, 224502 (2009).
25. L. Perfetti, P. A. Loukakos, M. Lisowski, U. Bovensiepen, H. Eisaki, M. Wolf, Ultrafast Electron Relaxation in Superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{2+\delta}$ by Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy. *Physical Review Letters* **99**, 197001 (2007).

-
26. C. L. Smallwood, J. P. Hinton, C. Jozwiak, W. Zhang, J. D. Koralek, H. Eisaki, D.-H. Lee, J. Orenstein, A. Lanzara, Tracking Cooper Pairs in a Cuprate Superconductor by Ultrafast Angle-Resolved Photoemission. *Science* **336**, 1137-1139 (2012).
 27. T. L. Miller, M. Ärrälä, C. L. Smallwood, W. Zhang, H. Hafiz, B. Barbiellini, K. Kurashima, T. Adachi, Y. Koike, H. Eisaki, M. Lindroos, A. Bansil, D.-H. Lee, A. Lanzara, Resolving unoccupied electronic states with laser ARPES in bismuth-based cuprate superconductors. *Physical Review B* **91**, 085109 (2015).
 28. W. Zhang, C. L. Smallwood, C. Jozwiak, T. L. Miller, Y. Yoshida, H. Eisaki, D.-H. Lee, A. Lanzara, Signatures of superconductivity and pseudogap formation in nonequilibrium nodal quasiparticles revealed by ultrafast angle-resolved photoemission. *Physical Review B* **88**, 245132 (2013).
 29. W. Zhang, C. Hwang, C. L. Smallwood, T. L. Miller, G. Affeldt, K. Kurashima, C. Jozwiak, H. Eisaki, T. Adachi, Y. Koike, D.-H. Lee, A. Lanzara, Ultrafast quenching of electron–boson interaction and superconducting gap in a cuprate superconductor. *Nat Commun* **5**, (2014).
 30. H. K. Onnes, On the sudden change in the rate at which the resistance of mercury disappears. *Comm. Leiden*, (1911).
 31. C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*. (Wiley, London, 2004).
 32. G. F. Sun, K. W. Wong, B. R. Xu, Y. Xin, D. F. Lu, Tc enhancement of HgBa₂Ca₂Cu₃O_{8+δ} by Tl substitution. *Physics Letters A* **192**, 122-124 (1994).
 33. Y. Kamihara, H. Hiramatsu, M. Hirano, R. Kawamura, H. Yanagi, T. Kamiya, H. Hosono, Iron-Based Layered Superconductor: LaOFeP. *Journal of the American Chemical Society* **128**, 10012-10013 (2006).
 34. H. Eschrig, J. Fink, L. Schultz, 15 Jahre Hochtemperatur-Supraleitung. *Physik Journal* **1**, (2002).
 35. L. Rettig, Ultrafast Dynamics of Correlated Electrons, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, (2012).
 36. D. Sprungmann, K. Westerholt, H. Zabel, M. Weides, H. Kohlstedt, Evidence for triplet superconductivity in Josephson junctions with barriers of the ferromagnetic Heusler alloy Cu₂MnAl. *Physical Review B* **82**, 060505 (2010).
 37. J. W. Rohlf, *Modern Physics from α to Z*. (Wiley, 1994).
 38. K. H. Bennemann, L. B. Ketterson, *Superconductivity - Conventional and Unconventional Superconductors*. (Springer Verlag, Berlin, 2008).
 39. G. Grüner, *Density Waves in Solids*. Frontiers in Physics (Addison-Wesley, 1994), vol. 89.
 40. Z. X. Shen, D. Dessau, B. Wells, D. King, W. Spicer, A. Arko, D. Marshall, L. Lombardo, A. Kapitulnik, P. Dickinson, S. Doniach, J. DiCarlo, T. Loeser, C. Park,

- Anomalously large gap anisotropy in the a-b Plane of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Physical Review Letters* **70**, 1553-1556 (1993).
41. H. Ding, M. Norman, J. Campuzano, M. Randeria, A. Bellman, T. Yokoya, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, Angle-resolved photoemission spectroscopy study of the superconducting gap anisotropy in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ *Physical Review B* **54**, R9678-R9681 (1996).
 42. B. Batlogg, G. Kourouklis, W. Weber, R. Cava, A. Jayaraman, A. White, K. Short, L. Rupp, E. Rietman, Nonzero isotope effect in $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$. *Physical Review Letters* **59**, 912-914 (1987).
 43. B. Batlogg, R. Cava, A. Jayaraman, R. van Dover, G. Kourouklis, S. Sunshine, D. Murphy, L. Rupp, H. Chen, A. White, K. Short, A. Mulsce, E. Rietman, Isotope Effect in the High- T_c Superconductors $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_7$ and $\text{Ba}_2\text{EuCu}_3\text{O}_7$. *Physical Review Letters* **58**, 2333-2336 (1987).
 44. J. Franck, J. Jung, M. Mohamed, S. Gygax, G. Sproule, Observation of an oxygen isotope effect in superconducting $(\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x)\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review B* **44**, 5318-5321 (1991).
 45. D. M. Ginsberg, *Physical Properties of High- T_c Superconductors IV*. (World Scientific, Singapur, 1994).
 46. T. Dahm, Isotope effect in the presence of a pseudogap. *Physical Review B* **61**, 6381-6386 (2000).
 47. J. Thompson, D. Christen, S. Sekula, B. Sales, L. Boatner, Independent superconductivity and paramagnetism in $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_z$. *Physical Review B* **36**, 836-839 (1987).
 48. S. Uchida, Zn-impurity effects on high-temperature superconductivity. *Physica C: Superconductivity* **357–360, Part 1**, 25-29 (2001).
 49. A. Abanov, A. V. Chubukov, J. Schmalian, Fingerprints of spin mediated pairing in cuprates. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **117–118**, 129-151 (2001).
 50. A. Chubukov, J. Schmalian, Superconductivity due to massless boson exchange in the strong-coupling limit. *Physical Review B* **72**, 174520 (2005).
 51. D. Scalapino, E. Loh, J. Hirsch, d -wave pairing near a spin-density-wave instability. *Physical Review B* **34**, 8190-8192 (1986).
 52. W. Buckel, R. Kleiner, *Supraleitung Grundlagen und Anwendungen*. (Wiley, Weinheim, 2013).
 53. P. W. Anderson, Is There Glue in Cuprate Superconductors? *Science* **316**, 1705-1707 (2007).

-
54. D. J. Scalapino, The case for $d_{x^2 - y^2}$ pairing in the cuprate superconductors. *Physics Reports* **250**, 329-365 (1995).
 55. F. Steglich, J. Aarts, C. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz, H. Schäfer, Superconductivity in the Presence of Strong Pauli Paramagnetism: CeCu_2Si_2 . *Physical Review Letters* **43**, 1892-1896 (1979).
 56. g. Coslovich, Disclosing the ultrafast dynamics of competing phases in high-temperature superconductors by time-resolved optical spectroscopy, Doktorarbeit, Univerista degli Studi di Trieste, (2011).
 57. N. Nishida, H. Miyatake, S. Okuma, T. Tamegai, Y. Iye, R. Yoshizaki, K. Nishiyama, K. Nagamine, Observation of antiferromagnetic ordering in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{YCu}_2\text{O}_y$ above room temperature by the μSR method. *Physica C: Superconductivity* **156**, 625-628 (1988).
 58. W. S. Lee, I. M. Vishik, K. Tanaka, D. H. Lu, T. Sasagawa, N. Nagaosa, T. P. Devereaux, Z. Hussain, Z. X. Shen, Abrupt onset of a second energy gap at the superconducting transition of underdoped $\text{Bi}2212$. *Nature* **450**, 81-84 (2007).
 59. J. Orenstein, A. J. Millis, Advances in the Physics of High-Temperature Superconductivity. *Science* **288**, 468-474 (2000).
 60. P. Anderson, Antiferromagnetism. Theory of Superexchange Interaction. *Physical Review* **79**, 350-356 (1950).
 61. V. Emery, Theory of high- T_c -superconductivity in oxides. *Physical Review Letters* **58**, 2794-2797 (1987).
 62. C. M. Varma, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams, Charge transfer excitations and superconductivity in “ionic” metals. *Solid State Communications* **62**, 681-685 (1987).
 63. J. Zaanen, G. Sawatzky, J. Allen, Band gaps and electronic structure of transition-metal compounds. *Physical Review Letters* **55**, 418-421 (1985).
 64. K. Tanaka, Photoemission study of Bi-cuprate high- T_c superconductors in the lightly-doped to underdoped regions, Doktorarbeit, University of Tokyo, (2004).
 65. M. Norman, Relation of neutron incommensurability to electronic structure in high-temperature superconductors. *Physical Review B* **61**, 14751-14758 (2000).
 66. D. van der Marel, Superconductivity: Beware of the pseudogap. *Nat Phys* **7**, 10-11 (2011).
 67. Y. Li, V. Baledent, G. Yu, N. Barisic, K. Hradil, R. A. Mole, Y. Sidis, P. Steffens, X. Zhao, P. Bourges, M. Greven, Hidden magnetic excitation in the pseudogap phase of a high- T_c superconductor. *Nature* **468**, 283-285 (2010).
 68. M. R. Norman, D. Pines, C. Kallin, The pseudogap: friend or foe of high T_c ? *Advances in Physics* **54**, 715-733 (2005).

69. R. Khasanov, T. Kondo, S. Strässle, D. Heron, A. Kaminski, H. Keller, S. Lee, T. Takeuchi, Evidence for a Competition between the Superconducting State and the Pseudogap State of $(\text{BiPb})_2(\text{SrLa})_2\text{CuO}_{6+}$ from Muon Spin Rotation Experiment. *Physical Review Letters* **101**, 227002 (2008).
70. A. Kanigel, U. Chatterjee, M. Randeria, M. Norman, G. Koren, K. Kadowaki, J. Campuzano, Evidence for Pairing above the Transition Temperature of Cuprate Superconductors from the Electronic Dispersion in the Pseudogap Phase. *Physical Review Letters* **101**, 137002 (2008).
71. T. Kondo, R. Khasanov, T. Takeuchi, J. Schmalian, A. Kaminski, Competition between the pseudogap and superconductivity in the high-Tc copper oxides. *Nature* **457**, 296-300 (2009).
72. T. Kondo, Y. Hamaya, A. D. Palczewski, T. Takeuchi, J. S. Wen, Z. J. Xu, G. Gu, J. Schmalian, A. Kaminski, Disentangling Cooper-pair formation above the transition temperature from the pseudogap state in the cuprates. *Nat Phys* **7**, 21-25 (2011).
73. N. W. Ashcroft, D. N. Mermin, *Festkörperphysik*. (Oldenbourg Wissenschaftsverlag München, 2001).
74. J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*. (John Wiley & Sons, Inc., 1999).
75. J. D. Rameau, High Resolution Photoemission Experiments on Copper Oxide Superconductors, Doktorarbeit, Sony Brook University, (2009).
76. A. Einstein, Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Annalen der Physik* **17**, 132 (1905).
77. S. Hüfner, *Photoelectron Spectroscopy*. (Springer-Verlag, Heidelberg, ed. 3, 2003).
78. Z.-X. Shen, D. S. Dessau, Electronic structure and photoemission studies of late transition-metal-oxides - Mott insulators and high-temperature superconductors. *Physics Reports* **253**, 1 (1995).
79. M. P. Seah, W. A. Dench, Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces: A Standard Data Base for Electron Inelastic Mean Free Paths in Solids. *Surface and Interface Analysis* **1**, 2 (1979).
80. J. D. Koralek, J. F. Douglas, N. C. Plumb, Z. Sun, A. V. Fedorov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. T. Cundiff, Y. Aiura, K. Oka, H. Eisaki, D. S. Dessau, Laser Based Angle-Resolved Photoemission, the Sudden Approximation, and Quasiparticle-Like Spectral Peaks in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Physical Review Letters* **96**, (2006).
81. J. G. Fujimoto, J. M. Liu, E. P. Ippen, N. Bliembergen, Femtosecond Laser Interaction with Metallic Tungsten and Nonequilibrium Electron and Lattice Temperatures. *Physical Review Letters* **53**, 1837 (1984).
82. W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, J. Bokor, Direct Measurement of Nonequilibrium Electron-Energy Distributions in Subpicosecond Laser-Heated Gold Films. *Physical Review Letters* **68**, 2834 (1992).

-
83. B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, G. Simon, Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation. *Physical Review B* **65**, 214303 (2002).
84. M. Lisowski, Elektronen- und Magnetisierungsdynamik in Metallen untersucht mit zeitaufgelöster Photoemission, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, (2005).
85. P. Kirchmann, Ultrafast Electron Dynamics in Low-Dimensional Materials, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, (2008).
86. L. Perfetti, P. A. Loukakos, M. Lisowski, U. Bovensiepen, H. Berger, S. Biermann, P. S. Cornaglia, A. Georges, M. Wolf, Time Evolution of the Electronic Structure of 1T-TaS₂ through the Insulator-Metal Transition. *Physical Review Letters* **97**, 067402 (2006).
87. T. Rohwer, S. Hellmann, M. Wiesenmayer, C. Sohrt, A. Stange, B. Slomski, A. Carr, Y. Liu, L. M. Avila, M. Kallane, S. Mathias, L. Kipp, K. Rossnagel, M. Bauer, Collapse of long-range charge order tracked by time-resolved photoemission at high momenta. *Nature* **471**, 490-493 (2011).
88. C. Rullière, *Laser Spectroscopy*. (Springer Verlag, Berlin, 1998).
89. R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. (Springer Verlag, Berlin, 2002).
90. A. Zangwill, *Physics at Surfaces*. (Cambridge University Press, Cambridge, 1988).
91. E. Knoesel, Ultrakurzzeit-Dynamik elektronischer Anregung auf Metalloberflächen, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, (1997).
92. A. Hotzel, Elektronendynamik der adsorbatbedeckten Cu(111)-Oberfläche, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, (1999).
93. P. S. Kirchmann, L. Rettig, D. Nandi, U. Lipowski, M. Wolf, U. Bovensiepen, A time-of-flight spectrometer for angle-resolved detection of low energy electrons in two dimensions. *Appl. Phys. A* **91**, 211-217 (2008).
94. Specs, PHOIBOS Hemispherical Analyzer Series. *Instruction Manual*.
95. C. Eickhoff, Zeitaufgelöste Zweiphotonen-Photoemission an der Si(001)-Oberfläche, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, (2010).
96. J. C. Deinert, Zeit- und winkelaufgelöste Zweiphotonen-Photoemissionsspektroskopie: Aufbau und Charakterisierung des Experiments anhand der Cu(111)- und der D₂O/Cu(111)-Oberfläche, Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, (2011).
97. J. D. Rameau, S. Freutel, L. Rettig, I. Avigo, M. Ligges, Y. Yoshida, H. Eisaki, J. Schneeloch, R. D. Zhong, Z. J. Xu, G. D. Gu, P. D. Johnson, U. Bovensiepen, Photoinduced changes in the cuprate electronic structure revealed by femtosecond time- and angle-resolved photoemission. *Physical Review B* **89**, 115115 (2014).

98. J. S. Wen, Z. J. Xu, G. Y. Xu, M. Hückler, J. M. Tranquada, G. D. Gu, Large Bi-2212 single crystal growth by the floating-zone technique. *Journal of Crystal Growth* **310**, 1401-1404 (2008).
99. M. R. Presland, J. L. Tallon, R. G. Buckley, R. S. Liu, N. E. Flower, General trends in oxygen stoichiometry effects on T_c in Bi and Tl superconductors. *Physica C: Superconductivity* **176**, 95-105 (1991).
100. W. Wu, J. Zhu, X. Sun, X. Zhao, G. Zhou, X. G. Li, Y. Zhang, Intrinsic broadening of the modulation-related reflections in a high-quality $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ crystal. *Journal of Applied Physics* **79**, 4232-4235 (1996).
101. J. D. Rameau, H. B. Yang, P. D. Johnson, Application of the Lucy–Richardson deconvolution procedure to high resolution photoemission spectra. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **181**, 35-43 (2010).
102. C. Gadermaier, A. S. Alexandrov, V. V. Kabanov, P. Kusar, T. Mertelj, X. Yao, C. Manzoni, D. Brida, G. Cerullo, D. Mihailovic, Electron-Phonon Coupling in High-Temperature Cuprate Superconductors Determined from Electron Relaxation Rates. *Physical Review Letters* **105**, 257001 (2010).
103. P. B. Allen, Theory of thermal relaxation of electrons in metals. *Physical Review Letters* **59**, 1460-1463 (1987).
104. M. Sentef, A. F. Kemper, B. Moritz, J. K. Freericks, Z.-X. Shen, T. P. Devereaux, Examining Electron-Boson Coupling Using Time-Resolved Spectroscopy. *Physical Review X* **3**, 041033 (2013).
105. Y. H. Wang, D. Hsieh, E. J. Sie, H. Steinberg, D. R. Gardner, Y. S. Lee, P. Jarillo-Herrero, N. Gedik, Measurement of Intrinsic Dirac Fermion Cooling on the Surface of the Topological Insulator Bi_2Se_3 Using Time-Resolved and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy. *Physical Review Letters* **109**, 127401 (2012).
106. A. Crepaldi, B. Ressel, F. Cilento, M. Zacchigna, C. Grazioli, H. Berger, P. Bugnon, K. Kern, M. Grioni, F. Parmigiani, Ultrafast photodoping and effective Fermi-Dirac distribution of the Dirac particles in Bi_2Se_3 . *Physical Review B* **86**, 205133 (2012).
107. I. Avigo, R. Cortés, L. Rettig, S. Thirupathaiah, H. S. Jeevan, P. Gegenwart, T. Wolf, M. Ligges, M. Wolf, J. Fink, U. Bovensiepen, Coherent excitations and electron–phonon coupling in $\text{Ba}/\text{EuFe}_2\text{As}_2$ compounds investigated by femtosecond time- and angle-resolved photoemission spectroscopy. *Journal of Physics: Condensed Matter* **25**, 094003 (2013).
108. W. Nessler, S. Ogawa, H. Nagano, H. Petek, J. Shimoyama, Y. Nakayama, K. Kishio, Femtosecond Time-Resolved Study of the Energy and Temperature Dependence of Hot-Electron Lifetimes in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Physical Review Letters* **81**, 4480-4483 (1998).
109. H. B. Yang, J. D. Rameau, P. D. Johnson, T. Valla, A. Tsvelik, G. D. Gu, Emergence of preformed Cooper pairs from the doped Mott insulating state in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Nature* **456**, 77-80 (2008).

-
110. J. L. Rose, *Ultrasonic Waves in Solid Media*. (Cambridge University Press, 2004).
 111. K.-Y. Yang, T. M. Rice, F.-C. Zhang, Phenomenological theory of the pseudogap state. *Physical Review B* **73**, 174501 (2006).
 112. P. W. Anderson, The Resonating Valence Bond State in La_2CuO_4 and Superconductivity. *Science* **235**, 1196-1198 (1987).
 113. J. P. F. LeBlanc, E. J. Nicol, J. P. Carbotte, Specific heat of underdoped cuprates: Resonating valence bond description versus Fermi arcs. *Physical Review B* **80**, 060505 (2009).
 114. A. J. H. Borne, J. P. Carbotte, E. J. Nicol, Specific heat across the superconducting dome in the cuprates. *Physical Review B* **82**, 094523 (2010).
 115. B. Valenzuela, E. Bascones, Phenomenological Description of the Two Energy Scales in Underdoped Cuprate Superconductors. *Physical Review Letters* **98**, 227002 (2007).
 116. J. P. F. LeBlanc, J. P. Carbotte, E. J. Nicol, Signatures of Fermi surface reconstruction in Raman spectra of underdoped cuprates. *Physical Review B* **81**, 064504 (2010).
 117. J. P. Carbotte, K. A. G. Fisher, J. P. F. LeBlanc, E. J. Nicol, Effect of pseudogap formation on the penetration depth of underdoped high- T_c cuprates. *Physical Review B* **81**, 014522 (2010).
 118. H. B. Yang, J. D. Rameau, Z. H. Pan, G. D. Gu, P. D. Johnson, H. Claus, D. G. Hinks, T. E. Kidd, Reconstructed Fermi Surface of Underdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Cuprate Superconductors. *Physical Review Letters* **107**, 047003 (2011).
 119. K.-Y. Yang, H. B. Yang, P. D. Johnson, T. M. Rice, F.-C. Zhang, Quasiparticles in the pseudogap phase of underdoped cuprate. *EPL* **86**, (2009).
 120. A. F. Kemper, M. A. Sentef, B. Moritz, J. K. Freericks, T. P. Devereaux, Effect of dynamical spectral weight redistribution on effective interactions in time-resolved spectroscopy. *Physical Review B* **90**, 075126 (2014).
 121. S. Dal Conte, L. Vidmar, D. Golez, M. Mierzejewski, G. Soavi, S. Peli, F. Banfi, G. Ferrini, R. Comin, B. M. Ludbrook, L. Chauviere, N. D. Zhigadlo, H. Eisaki, M. Greven, S. Lupi, A. Damascelli, D. Brida, M. Capone, J. Bonca, G. Cerullo, C. Giannetti, Snapshots of the retarded interaction of charge carriers with ultrafast fluctuations in cuprates. *Nat Phys* **advance online publication**, (2015).

Veröffentlichungen

J. D. Rameau, S. Freutel, L. Rettig, I. Avigo, M. Ligges, Y. Yoshida, H. Eisaki, J. Schneeloch, R. D. Zhong, Z. J. Xu, G. D. Gu, P. D. Johnson, U. Bovensiepen, Photoinduced changes in the cuprate electronic structure revealed by femtosecond time- and angle-resolved photoemission. *Physical Review B* **89**, 115115 (2014)

M. Ligges, M. Sandhofer, I. Sklyadneva, R. Heid, K.-P. Bohnen, S. Freutel, L. Rettig, P. Zhou, P. M. Echenique, E. V. Chulkov, U. Bovensiepen, Electron-phonon coupling in quantum-well states of the Pb/Si(1 1 1) system. *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**, 352001 (2014)

J. D. Rameau, S. Freutel, L. Rettig, I. Avigo, M. Ligges, M. Senref, A. F. Kemper, Y. Yoshida, J. Schneeloch, R. D. Zhong, Z. J. Xu, G. D. Gu, M. Sentef, P. D. Johnson, U. Bovensiepen, Real-time Boson Emission at the Nodal Kink Energy in the Unoccupied Photoelectron Spectrum of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (*in Vorbereitung, Manuskript liegt vor, Autorenliste vorläufig*)

S. Freutel, J. D. Rameau, L. Rettig, I. Avigo, M. Ligges, Y. Yoshida, H. Eisaki, J. Schneeloch, R. D. Zhong, Z. J. Xu, G. D. Gu, P. D. Johnson, U. Bovensiepen, Photodoping in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (*in Vorbereitung*)

J. D. Rameau, S. Freutel, L. Rettig, I. Avigo, M. Ligges, Y. Yoshida, H. Eisaki, J. Schneeloch, R. D. Zhong, Z. J. Xu, G. D. Gu, P. D. Johnson, L. Kemper U. Bovensiepen, Anomalous Electronic Compressibility in the Pseudogap state of Underdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (*in Vorbereitung, Manuskript liegt vor*)

M. Ligges, I. Avigo, S. Freutel, M. Kallane, P. Zhou, L. Kipp, K. Rossnagel, and U. Bovensiepen, Coherent and incoherent excitations in the Mott insulator $1T\text{-TaS}_2$ (*in Vorbereitung*)

Danksagung

Für die wissenschaftliche Betreuung und die Möglichkeit zur Promotion in seiner Arbeitsgruppe möchte ich mich zuerst bei Prof. Dr. Uwe Bovensiepen bedanken. Mein Dank gilt zudem Dr. Manuel Ligges, welcher in privater und professioneller Hinsicht nicht allein in Bezug auf wissenschaftliche Anliegen immer ein offenes Ohr hatte.

Mein Dank gilt zudem den Kooperationspartnern Peter Johnson und Jonathan Rameau von den Brookhaven National Laboratories für eine erfolgreiche Zusammenarbeit und die vielen hilfreichen Diskussionen und Erläuterungen.

Weiterhin danke ich allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Bovensiepen an der Universität Duisburg-Essen, insbesondere Michael Bieske sowie meinen Büronachbarn Mathias Sandhofer und Isabella Avigo für die zahlreichen Diskussionen, Ideen, technische Unterstützung und Hilfestellungen aller Art, ohne die ein Zustandekommen der vorliegenden Arbeit nicht möglich gewesen wäre. Auch danke ich Peter Stauche, von der Ruhruniversität Bochum, welcher bei der Durchführung der Laue Aufnahmen eine unverzichtbare Hilfe war.

Nicht zuletzt gilt mein Dank meiner Familie und Freunden, die mich in dieser ereignisreichen Zeit während der Entstehung dieser Arbeit begleitet und unterstützt haben.

Danke!